

**ENERGIE- UND MASSENANALYSE ZERSTÄUBTER
EIN- UND MEHRATOMIGER WOLFRAMIONEN**

Gerhard Staudenmaier

1973



Digitized by the Internet Archive
in 2026

ENERGIE- UND MASSENANALYSE ZERSTÄUBTER
EIN- UND MEHRATOMIGER WOLFRAMIONEN

INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von

Diplom-Physiker Gerhard Staudenmaier
aus Heidenheim/Brenz

München 1973



1. Berichterstatter Prof. Dr. R. Sizmann
2. Berichterstatter Prof. Dr. W. Rollwagen

Tag der mündlichen Prüfung 19. Juli 1973

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Zusammenfassung.....	1
1. Einleitung.....	3
2. Konzeption der Apparatur	
2.1. Allgemeine Überlegungen.....	5
2.2. Abbildungseigenschaften des Spektrometers.....	6
2.3. Spezielle Wahl der Parameter des Spektrometers.....	12
2.4. Berücksichtigung der Streufelder.....	16
3. Experimenteller Aufbau	
3.1. Primärionen.....	17
3.2. Vorbehandlung, Halterung und Orientierung der Wolfram-Proben.....	19
3.3. Aufbau des Spektrometers.....	21
3.4. Sekundärionennachweis.....	22
3.5. Durchführung der Messungen und Fehlerbetrachtung.....	23
4. Meßergebnisse	
4.1. Vorbemerkungen und Definitionen.....	26
4.2. Untersuchungen an polykristallinem Wolfram	
4.2.1. Typisches Massenspektrum.....	28
4.2.2. Energieverteilung der Cluster bei Beschuß mit Xenon.....	29
4.2.3. Abhängigkeit der Energieverteilung der Cluster von der Masse der Projektilionen...	32
4.2.4. Massenspektrum der Cluster bei Nachbeschleunigung.....	36
4.2.5. Winkelabhängigkeit der Clusterintensität...	37
4.2.6. Stromdichteabhängigkeit der Cluster- intensität.....	39
4.3. Untersuchungen an einkristallinem Wolfram	
4.3.1. Anisotrope Clusteremission in $\langle 111 \rangle$	40
4.3.2. Abhängigkeit der Clusterintensität von der Einschußrichtung der Primärionen.....	43

4.4.	Oberflächenstrukturen.....	45
5.	Bisheriges Verständnis des Zerstäubungsvor- ganges und der Sekundärionenbildung	
5.1.	Zerstäubungsmodell für amorphe und polykristalline Substanzen.....	47
5.2.	Modellvorstellungen zur anisotropen Zerstäubung von Einkristallen	48
5.3.	Sekundärionenausbeute bei der Zerstäubung	50
5.4.	Clusteremission bei der Zerstäubung.....	51
6.	Diskussion	
6.1.	Vergleich der Sekundärionen- und der Zerstäubungsausbeute.....	54
6.2.	Deutung der Energieabhängigkeit der Clusterausbeute.....	57
6.3.	Anisotrope Clusteremission.....	63
6.4.	Sonstige Effekte.....	67
6.5.	Schlußbemerkung.....	69
7.	Literaturverzeichnis.....	71

Zusammenfassung

Die Masse- und Energieverteilung der bei Beschuß von polykristallinen Wolfram-Proben mit 150 keV He-, Ne-, Ar-, Kr-, Xe- und Cu-Ionen zerstäubten Sekundärionen wurde mit Hilfe eines geschwindigkeitsfokussierenden Spektrometers untersucht. Im Massenspektrum konnten Cluster W_n^+ mit einer Größe bis zu $n = 34$ nachgewiesen werden. Die Clusterausbeute nimmt mit steigender Anzahl der Atome in einem Cluster monoton ab. Mit steigender Projektilmasse nimmt die Clusterausbeute zu.

Die Abhängigkeit der W^+ -Ausbeute von der Masse der Projektilionen kann mit Hilfe der Zerstäubungstheorie von Sigmund befriedigend erklärt werden. Daraus kann man schließen, daß der Ionisierungsgrad nicht von der Projektilmasse, d. h. nicht von der Kaskadenstruktur abhängt.

Für die Clusterionen W_n^+ ergeben sich Abweichungen vom theoretischen Verlauf der relativen Zerstäubungsausbeute. Die experimentellen Werte sind kleiner als die entsprechenden theoretischen Daten. Dies hängt damit zusammen, daß für die Clusterausbeute die bei einem Einzelprozeß emittierte Zahl der zerstäubten Atome von Bedeutung ist und nicht die im zeitlichen Mittel emittierte Zahl der Atome.

Infolge der mit wachsender Clustergröße und steigender Energie schnell abnehmenden Intensität konnte die Energieverteilung nur für Cluster W_n^+ mit $n \leq 4$ gemessen werden. Dabei stellte sich heraus, daß das Energiespektrum unabhängig von der Masse der Primärionen ist. Daraus kann geschlossen werden, daß die Energieverteilung in der Stoßkaskade von der Projektilmasse unabhängig ist.

Ein kinetisches Modell der Clusterbildung, bei dem angenommen wird, daß Cluster durch Stoßkaskaden erzeugt werden, führt zu einer qualitativen Deutung der Energieabhängigkeit der Clusterausbeute. Da sowohl die Energieabhängigkeit der neutralen Cluster als auch der energieabhängige Ionisierungsgrad nicht genau bekannt sind, lassen sich quantitative Aussagen über die Energieverteilung der Cluster nicht gewinnen.

Bei der Zerstäubung von Wolfram-Einkristallen mit 150 keV Ar^+ -Ionen wurde die anisotrope Clusterausbeute in $\langle 111 \rangle$ -Richtung untersucht. Dabei wurde ein überraschendes Ergebnis erhalten: Die relative anisotrope Ausbeute nimmt mit wachsender Clustergröße zu. Die anisotrope Ausbeute ist von der Clusterenergie abhängig. Für die untersuchten Ionen W^+ , W_2^+ und W_3^+ wurde ein Maximum bei einer Energie von ca. 60 eV gefunden.

Aus einem Vergleich mit Modellvorstellungen zur anisotropen Zerstäubungsausbeute kann geschlossen werden, daß Fokussonen sehr wahrscheinlich nicht zur anisotropen W_3^+ -Ausbeute beitragen. Im Fall von W^+ und W_2^+ dagegen kann ein Fokussonenbeitrag zur anisotropen Emission nicht ausgeschlossen werden.

1. Einleitung

Die durch Beschuß von Festkörperoberflächen mit Ionen hervorgerufene Materialabtragung wird Zerstäubung genannt. Der Vorgang, der erstmals 1852 von Grove /1/ beobachtet wurde, ist in den letzten 20 Jahren eingehend untersucht worden (Monographien /2 - 6/). Bei der Zerstäubung wird eine Vielzahl von Teilchen emittiert: neutrale, angeregte und geladene Atome und mehratomige Agglomerate (Cluster) des Probenmaterials, der an der Oberfläche absorbierten Verunreinigungen und der im Material deponierten Projektile.

In den meisten Arbeiten wurde die Gesamtemission des Probenmaterials untersucht. Dabei stellte sich heraus, daß die Zerstäubungsausbeute von der Projektil-Target-Kombination und von den Einschußbedingungen (Energie und Einfallswinkel der Primärionen) abhängt. Ausgangspunkt aller neueren Theorien ist die Annahme, daß die Zerstäubung im wesentlichen durch Stoßwechselwirkung zwischen Projektil und Targetatomen einerseits und Targetatomen untereinander andererseits verursacht wird. Die gesamte Energiedissipation kann durch Stoßkaskaden beschrieben werden. Stoßkaskaden, die die Oberfläche durchdringen, führen zur Zerstäubung /7, 8/.

In Einkristallen wird die Ausbeute der Stoßkaskaden durch die Gitterstruktur beeinflusst (z. B. /9/). Entlang dichtgepackter Gittergeraden ist eine Impulsfokussierung möglich (Fokussonenmodell /10, 11/). Wie jedoch Lehmann und Sigmund /12/ gezeigt haben, ist eine Erklärung der anisotropen Zerstäubung auch allein aufgrund einer geordneten Oberflächenstruktur und der Existenz einer Oberflächenbindungsenergie möglich (Oberflächenmodell). Die Frage, welcher Mechanismus unter welchen Bedingungen den größeren Beitrag zur Zerstäubung liefert, kann noch nicht eindeutig beantwortet werden /13 - 15/.

Beim Vergleich theoretischer und experimenteller Zerstäubungsausbeuten stellte sich heraus, daß für eine detaillierte Prüfung der existierenden Zerstäubungsmodelle die Kenntnis der

Energieverteilung der emittierten Teilchen notwendig ist. Messungen der Energieverteilung aller Zerstäubungsprodukte, d. h. insbesondere der Neutralteilchen können nur mit Hilfe einer mechanischen Geschwindigkeitsanalyse durchgeführt werden /16 - 19/. Nachteile der Methode liegen darin, daß das Material zum Nachweis aufgefangen werden muß und eine Unterscheidung zwischen ein- und mehratomigen Teilchen nicht möglich ist.

Für eine massenspektrometrische Untersuchung der neutralen Zerstäubungsprodukte ist eine nachträgliche Ionisierung der Sekundärteilchen erforderlich. Hierfür bietet sich die Ionisierung durch Elektronenstoß an. Man kann jedoch abschätzen, daß zur Erzielung eines ausreichenden Ionisierungsgrades eine so hohe Elektronendichte erforderlich ist, daß die Energieverteilung insbesondere der langsamen Sekundärteilchen durch die Raumladung verfälscht wird. Darüberhinaus ist es möglich, daß bei der Ionisierung die Cluster zersetzt werden. Zur Massanalyse können deshalb nur die emittierten Sekundärionen benutzt werden. Diese Methode wurde bereits erfolgreich eingesetzt /20, 21/, obwohl der Ionisierungsgrad der Sekundärteilchen sehr klein ist (10^{-3} bis 10^{-6}) /22 - 24/. Der entscheidende Nachteil ist, daß in der gemessenen Energieverteilung implizit die sehr wahrscheinlich energieabhängige Ionisierungswahrscheinlichkeit enthalten ist. Dennoch sind Untersuchungen der Energieverteilung der Sekundärionen insbesondere bei der Messung relativer Ausbeuten gut geeignet, weiteres experimentelles Material zur Deutung des Zerstäubungsvorganges zu liefern.

Messungen an einatomigen Sekundärionen waren im Anfangsstadium dieser Arbeit /25/ Hauptgegenstand der Untersuchungen. Während der Experimente wurden Ergebnisse anderer Autoren bekannt, die zeigten, daß im Massenspektrum der Sekundärionen auch Clusterionen des Targetmaterials auftreten /20, 26/. Die Beobachtungen ließen darauf schließen, daß ein Studium der Masse- und Energieverteilung der Clusterionen Information über den Mechanismus der Energiedissipation und der Zerstäubung liefert, die über die Aussagekraft der einatomigen Sekundärionenspektren hinausgeht.

Ziel der vorliegenden Arbeit war deshalb die Untersuchung der Masse- und Energieverteilung von Clusterionen unter Variation von möglichst vielen Versuchsparametern. Als Targetmaterial wurde Wolfram gewählt. Durch Änderung der Masse der Projektilionen wurde versucht, Struktur und Ausdehnung der Stoßkaskade und damit eventuell die Clusteremission zu beeinflussen. Untersuchungen an einkristallinem Wolfram sollten darüberhinaus zur Klärung des Einflusses der Gitterstruktur auf die Ausbreitung der Stoßkaskade beitragen.

2. Konzeption der Apparatur

2.1 Allgemeine Überlegungen

Für die geplanten Experimente werden benötigt: ein Beschleuniger zur Erzeugung eines Primärionenstrahles, ein Goniometer zur Halterung und Orientierung der Proben, ein Spektrometer zur Massen- und Energieanalyse der Sekundärionen und ein Detektor zum Nachweis der Sekundärionen.

Energie und Stromdichte des Primärstrahls sollen so hoch sein, daß die Zerstäubungsausbeute möglichst groß und die Restgasbelegung des Targets möglichst gering ist. Die Divergenz des Primärionenstrahls soll so klein sein, daß Anisotropieeffekte an Einkristallen bei Variation der Einschußrichtung beobachtbar sind.

Die wichtigste Forderung bei der Auslegung des Spektrometers ist die einer hohen Transmission. Damit wird erreicht, daß geladene Zerstäubungsprodukte geringer Intensität noch einer Messung zugänglich sind. Der genannten Forderung kann wie üblich durch stigmatische Abbildung und Geschwindigkeitsfokussierung (z. B. /27/) Rechnung getragen werden. Darüberhinaus kann im vorliegenden Fall die Transmission auf Kosten der Massenauflösung erhöht werden, da im Prinzip nur eine Trennung der Clusterionen notwendig ist, d. h., das Massenauflösungsvermögen braucht nur von der Größe der maximal nachzuweisenden

relativen Clustergröße zu sein.

Wegen der zu erwartenden geringen Ionenintensitäten kann als Ionendetektor nur ein offener Sekundärelektronenvervielfacher verwendet werden.

2.2 Abbildungseigenschaften des Spektrometers

Die vom Target emittierten Ionen sollen im Spektrometer massen- und energieanalysiert und in die Eintrittsöffnung des Ionendetektors fokussiert werden. Im vorliegenden Fall werden Masse und Energie der Ionen durch aufeinanderfolgende Impuls- und Energieanalyse bestimmt. Die Impulsanalyse erfolgt in einem homogenen magnetischen Sektorfeld, die Energieanalyse in einem elektrischen Radialfeld (Abb. 1).

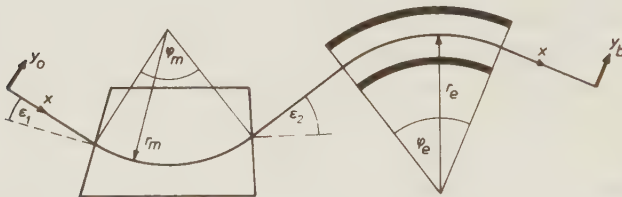


Abb. 1. Schematischer Aufbau des Massenspektrometers bestehend aus einem magnetischen Sektorfeld und einem elektrischen Radialfeld.

Ein homogenes magnetisches Sektorfeld mit gerader Polschuhbegrenzung hat für senkrechten Ein- und Austritt nur in der Ablenkebene fokussierende Eigenschaften (im folgenden horizontale Ebene genannt). Bei schiefe Ein- oder Austritt erfolgt aufgrund des Streufeldes Fokussierung senkrecht zur Ablenkebene (vertikal). Die Impulsdispersion bleibt auf die horizontale Ebene beschränkt. Das elektrische Radialfeld eines Zylinderkondensators hat fokussierende und energiedispersive Eigenschaften nur in der Ablenkebene. Durch Kombination der beiden Felder läßt sich die eingangs geforderte stigmatische Abbildung und Geschwindigkeitsfokussierung erreichen.

Die Abbildung der Ionen läßt sich am Übersichtlichsten in Matrixschreibweise darstellen (z. B. /28/). Bezeichnet man die Bewegungsrichtung der Ionen als x-Richtung und die Abweichung von der horizontalen bzw. vertikalen Ebene als y- bzw. z-Koordinate, dann lauten die Abbildungsgleichungen bei Beschränkung auf Bildfehler erster Ordnung.

$$\begin{pmatrix} y_b \\ y'_b \\ \delta \end{pmatrix} = H \begin{pmatrix} y_o \\ y'_o \\ \delta \end{pmatrix} = (h_{ij}) \begin{pmatrix} y_o \\ y'_o \\ \delta \end{pmatrix} \quad (1)$$

und

$$\begin{pmatrix} z_b \\ z'_b \end{pmatrix} = V \begin{pmatrix} z_o \\ z'_o \end{pmatrix} = (v_{ij}) \begin{pmatrix} z_o \\ z'_o \end{pmatrix} \quad (2)$$

Dabei bezeichnen die Indizes b und o die entsprechenden Größen von Bild und Objekt (vgl. Abb. 1). Ferner bedeuten $y'_i = dy_i/dx$, $z'_i = dz_i/dx$ und δ die relative Geschwindigkeitsabweichung $\Delta u/u$ bzw. die relative Massenabweichung $\Delta m/m$. Die Matrizen $H^{(u)} = H(\dots, \Delta u/u)$ und $H^{(m)} = H(\dots, \Delta m/m)$ unterscheiden sich nur in den Elementen h_{13} und h_{23} .

Die Matrizen H und V ergeben sich durch Multiplikation der Matrizen der abbildenden Elemente und der Driftstrecken:

$$H = L_{e2} K L_{e1} L_{m2} M L_{m1} = L_{e2} K L M L_{m1} \quad (3)$$

und

$$V = L_{vb} N L_{vo} \quad (4)$$

Dabei sind die L_i die Matrizen der Driftstrecken gemäß Abb. 2, K die Matrix des elektrischen Feldes und M und V die des magnetischen Feldes in der horizontalen bzw. vertikalen Ebene.

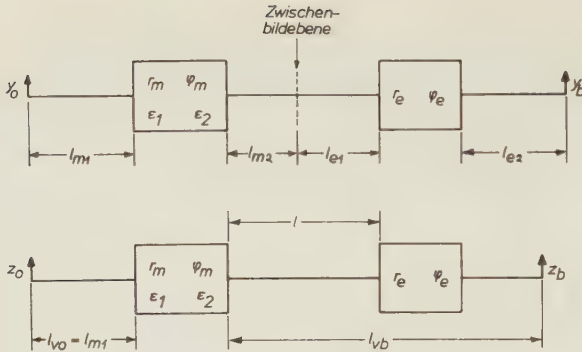


Abb. 2. Abbildungsparameter des Spektrometers.

Am einfachsten lässt sich die Matrix der Driftstrecken darstellen

$$L_i = \begin{bmatrix} 1 & l_i \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (5)$$

Die Elemente der Matrix K des elektrischen Radialfeldes lauten in der Darstellung $K = K(\dots, \Delta E/E) / 29/$

$$\left. \begin{aligned} k_{11} &= \cos\sqrt{2} \phi_e \\ k_{12} &= (r_e/\sqrt{2}) \sin\sqrt{2} \phi_e \\ k_{13} &= (r_e/2) (1 - \cos\sqrt{2} \phi_e) \\ k_{21} &= (-\sqrt{2}/r_e) \sin\sqrt{2} \phi_e \\ k_{22} &= \cos\sqrt{2} \phi_e \\ k_{23} &= (1/\sqrt{2}) \sin\sqrt{2} \phi_e \\ k_{31} &= k_{32} = 0, \quad k_{33} = 1 \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

Die Elemente der Abbildungsmatrix des magnetischen Feldes lauten in der Darstellung $M = M(\dots, \Delta p/p) / 30/$ für die horizontale Ebene

$$\left. \begin{aligned}
 m_{11} &= \cos(\phi_m - \varepsilon_1) / \cos \varepsilon_1 \\
 m_{12} &= r_m \sin \phi_m \\
 m_{13} &= r_m (1 - \cos \phi_m) \\
 m_{21} &= - \frac{(1 - \tan \varepsilon_1 \tan \varepsilon_2) \sin(\phi_m - \varepsilon_1 - \varepsilon_2)}{r_m \cos(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)} \\
 m_{22} &= \cos(\phi_m - \varepsilon_2) / \cos \varepsilon_2 \\
 m_{23} &= \sin \phi_m + (1 - \cos \phi_m) \tan \varepsilon_2 \\
 m_{31} &= m_{32} = 0, \quad m_{33} = 1
 \end{aligned} \right\} (7)$$

und für die vertikale Ebene

$$\left. \begin{aligned}
 n_{11} &= 1 - \phi_m \tan \varepsilon_1 \\
 n_{12} &= r_m \phi_m \\
 n_{21} &= (-\tan \varepsilon_1 - \tan \varepsilon_2 + \phi_m \tan \varepsilon_1 \tan \varepsilon_2) / r_m \\
 n_{22} &= 1 - \phi_m \tan \varepsilon_2
 \end{aligned} \right\} (8)$$

Die Größen ϕ_m , r_m , ε_1 , ε_2 , ϕ_e und r_e sind in Abb. 1 definiert.

Die im folgenden benötigten Elemente der Matrizen H und V lauten

$$\left. \begin{aligned}
 v_{11} &= n_{11} + l_{vb} n_{21} \\
 v_{12} &= n_{11} l_{vo} + n_{12} + l_{vb} (n_{21} l_{vo} + n_{22}) \\
 v_{21} &= n_{21}
 \end{aligned} \right\} (9)$$

und

$$\begin{aligned}
 h_{11} &= (k_{11} + l_{e2}k_{21}) (m_{11} + l_{m2}m_{21}) \\
 &= m_{21}(k_{12} + l_{e2}k_{22}) + (k_{11} + l_{e2}k_{21}) (m_{11} + l_{m2}m_{21}) \\
 h_{12} &= (k_{11} + l_{e2}k_{21}) (m_{11}l_{m1} + m_{12} + l_{m2}(m_{21}l_{m1} + m_{22})) \\
 &\quad + (k_{11}l_{e1} + k_{12} + l_{e2}(k_{21}l_{e1} + k_{22})) (m_{21}l_{m1} + m_{22}) \\
 h_{21} &= k_{21}(m_{11} + l_{m2}m_{21}) + m_{21}(k_{21}l_{e1} + k_{22}) \\
 &= k_{21}(m_{11} + l_{m2}m_{21}) + k_{22}m_{21} \\
 h_{13}^{(m)} &= (k_{11} + l_{e2}k_{21}) (m_{13} + l_{m2}m_{23}) + k_{13} + l_{e2}k_{23} \\
 &= (k_{11} + l_{e2}k_{21}) (m_{13} + l_{m2}m_{23}) + m_{23}(k_{12} + l_{e2}k_{22}) \\
 &\quad + k_{13} + l_{e2}k_{23} \\
 h_{13}^{(u)} &= (k_{11} + l_{e2}k_{21}) (m_{13} + l_{m2}m_{23}) + 2(k_{13} + l_{e2}k_{23}) \\
 &= (k_{11} + l_{e2}k_{21}) (m_{13} + l_{m2}m_{23}) + m_{23}(k_{12} + l_{e2}k_{22}) \\
 &\quad + 2(k_{13} + l_{e2}k_{23})
 \end{aligned} \tag{10}$$

Aus den Abbildungsmatrizen H und V lassen sich die optischen Eigenschaften des Systems berechnen:

a) Die Bedingung für Punkt-zu-Punkt Abbildung lautet

$$\partial y_b / \partial y'_o = h_{12} = 0 \tag{11}$$

$$\partial z_b / \partial z'_o = v_{12} = 0 \tag{12}$$

Da das Gesamtsystem aus zwei optischen Elementen besteht, stellt Glg. (11) eine reduzierte Darstellung für die folgenden beiden Abbildungsgleichungen dar

$$r_{12} = l_{m2} + (m_{11}l_{m1} + m_{12}) / (m_{21}l_{m1} + m_{22}) = 0 \tag{13}$$

$$s_{12} = l_{e2} + (k_{11}l_{e1} + k_{12}) / (k_{21}l_{e1} + k_{22}) = 0 \tag{14}$$

mit $R = L_{m2} \ M \ L_{m1}$ und $S = L_{e2} \ K \ L_{e1}$

b) Die Vergrößerungen W_h und W_v sind definiert als

$$W_h = \partial y_b / \partial y_o = h_{11} \quad (15)$$

$$W_v = \partial z_b / \partial z_o = v_{11} \quad (16)$$

c) Das Massenauflösungsvermögen ist gegeben durch

$$\begin{aligned} R = m/\Delta m &= (\partial y_b / \partial (\Delta m/m)) (1/2h_{11}y_o) \\ &= h_{13}^{(m)} / 2h_{11}y_o \end{aligned} \quad (17)$$

wobei $2y_o$ die horizontale Objektgröße ist.

d) Die Bedingung für Geschwindigkeitsfokussierung lautet

$$\partial y_b / \partial \delta = h_{13}^{(u)} = 0 \quad (18)$$

mit $\delta = \Delta u/u$

e) Die Brennweiten f_h und f_v sind

$$f_h = -1/h_{21} \quad (19)$$

$$f_v = -1/v_{21} \quad (20)$$

f) Zur Berechnung der horizontalen Brennpunktabstände g_{ho} und g_{hb} ist es zweckmäßig Glg. (3) auf die Form von Glg. (4) zu bringen

$$H = L_{e2} K L_{e1} L_{m2} M L_{m1} = : L_{e2} P L_{m1} \quad (21)$$

In der Darstellung gemäß Glg. (21) und Glg. (4) ergeben sich für die Brennpunktabstände

$$\text{in der horizontalen Ebene } g_{ho} = -P_{22}/P_{21} \quad (22)$$

$$g_{hb} = -P_{11}/P_{21}$$

in der vertikalen Ebene $g_{vo} = - n_{22}/n_{21}$ (23)

$$g_{vb} = - n_{11}/n_{21}$$

g) Die Bildweite l_{e2} ergibt sich durch Einsetzen von Glg. (11) in Glg. (21)

$$l_{e2} = - (p_{11}l_{m1} + p_{12})/(p_{21}l_{m1} + p_{22}) \quad (24)$$

2.3 Spezielle Wahl der Parameter des Spektrometers

Bei der Konstruktion des Spektrometers sind insgesamt 13 Größen festzulegen, und zwar l_{m1} , r_m , ϕ_m , ϵ_1 , ϵ_2 , l_{m2} , l_{e1} , r_e , ϕ_e , l_{e2} , l_{vb} , y_o und R (vgl. Abb. 2). Um Schwierigkeiten bei der Ermittlung der Zwischenbildebene und den damit zusammenhängenden Justierungsproblemen auf ein Mindestmaß zu reduzieren, wird das Spektrometer so ausgelegt, daß sich in der horizontalen Ebene zwischen den dispersiven Elementen ein paralleler Strahlengang ergibt (Abb. 3). l_{m2} und l_{e1} werden damit mathematisch unendlich und für die Konstruktion bedeutungslos. Als Abstand zwischen Sektormagnet und Zylinderkondensator wird stattdessen die neue Größe l eingeführt. Diese Größe ist deshalb von Bedeutung, weil nach Möglichkeit die vertikale und horizontale Bildebene zusammenfallen sollen, d. h.

$$l_{vb} = l + r_e \phi_e + l_{e2} \quad (25)$$

Den nunmehr 12 festzulegenden Größen stehen bei Punkt-zu-Punkt Abbildung (Glg. (12 - 14)), bei Geschwindigkeitsfokussierung (Glg. (18)), bei Vorgabe des Massenauflösungsvermögens (Glg. (17)) sowie gemäß Glg. (25) insgesamt sechs Bestimmungsgleichungen gegenüber. Über sechs der oben genannten Unbekannten kann somit noch verfügt werden. Hier werden r_e und ϕ_e durch Einsatz eines bereits vorhandenen Zylinderkondensators festgelegt. Ferner kann ohne Einschränkung ϵ_1 zu Null gewählt werden. Zur Erzielung eines hohen Masse-Energie-

Produkts im Sektormagneten muß der Radius r_m so groß wie möglich gewählt werden. Dieser Forderung mußte beim Umbau eines vorhandenen Magneten Rechnung getragen werden. Das Massenauflösungsvermögen des Spektrometers wird durch die höchste nachzuweisende Clustergröße festgelegt. Schließlich wird noch über l_{m1} verfügt, denn diese Größe bestimmt die Abmessungen der Targetkammer.

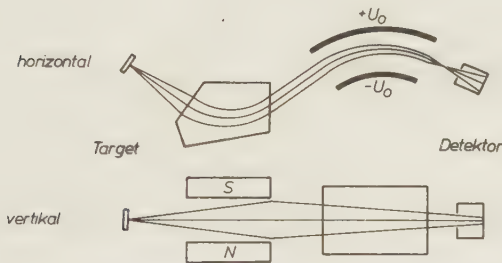


Abb. 3. Strahlengang im Spektrometer (schematisch).

Die sechs unbekannten Größen ϕ_m , ϵ_2 , l_{e2} , l , l_{vb} und y_0 ergeben sich aus oben genannten Gleichungen wie folgt:

Glg. (13) reduziert sich wegen $l_{m2} \rightarrow \infty$ zu

$$l_{m1} = -\frac{m_{22}}{m_{21}} = -\frac{r_m (\tan \epsilon_2 \sin \phi_m + \cos \phi_m)}{\tan \epsilon_2 \cos \phi_m - \sin \phi_m} \quad (26)$$

Glg. (18) lautet unter Berücksichtigung von $l_{m1} \rightarrow \infty$ und

$l_{m2} \rightarrow \infty$ $m_{23} = 2k_{23}$, oder explizit

$$\tan \epsilon_2 = \frac{\sqrt{2} \sin \sqrt{2} \phi_e - \sin \phi_m}{1 - \cos \phi_m} \quad (27)$$

Aus den Gleichungen (26) und (27) lassen sich ϵ_2 und ϕ_m bestimmen.

l_{e2} erhält man unter Berücksichtigung von $l_{e1} \rightarrow \infty$ aus Glg. (14)

$$l_{e2} = -k_{11}/k_{21} = (r_e/\sqrt{2}) \cot\sqrt{2}\phi_e \quad (28)$$

l_{vb} ergibt sich aus Glg. (12)

$$\begin{aligned} l_{vb} &= - (n_{11}l_{vo} + n_{12}) / (n_{21}l_{vo} + n_{22}) \\ &= \frac{l_{m1} + \phi_m r_m}{l_{m1} \tan \epsilon_2 / r_m + \phi_m \tan \epsilon_2 - 1} \end{aligned} \quad (29)$$

mit $l_{vo} = l_{m1}$.

Schließlich folgt aus Glg. (17) und (10)

$$2y_o = h_{13}^{(m)} / Rh_{11} = m_{23} / Rm_{21} \quad (30)$$

Die freigewählten und berechneten Größen des Spektrometers sind in Tab. 1 zusammengestellt. Bei entsprechender Größe des Eintrittsfensters des Ionendetektors ist es ausreichend, wenn die Abbildung in der vertikalen Ebene so ausgelegt wird, daß bildseitig ein paralleler bzw. konvergenter Strahlverlauf vorliegt (vgl. Abb. 3).

Für die Anordnung der dispersiven Elemente zueinander ist noch von Bedeutung, daß die Ablenkung im Zylinderkondensator gegen-sinnig zu der im Sektormagneten erfolgt. Dies ist notwendig, um die Geschwindigkeitsfokussierung im Fall des parallelen Strahlverlaufs zwischen den beiden Feldern zu erhalten.

Tab. 1. Zusammenstellung der geometrischen und ionenoptischen Daten des Spektrometers.

Sektormagnet		Zylinderkondensator	
r_m	= 170 mm	r_e	= 300 mm
ϕ_m	= 70°	ϕ_e	= 60°
ϵ_1	= 0		
ϵ_2	= $35,5^\circ$		
Spektrometer			
Gegenstandsweite	l_{m1}	=	247 mm
Bildweite	l_{e2}	=	19 mm
	l_{vb}	=	521 mm
Abstand der Felder	l	=	170 mm
Massenauflösungs- vermögen	$m/\Delta m$	=	60
Objektgröße	y_o	=	3 mm
Vergrößerung horizontal	w_h	=	- 0,88
vertikal	w_v	=	- 1,1

2.4 Berücksichtigung der Streufelder

In den vorangegangenen Abschnitten wurden die ionenoptischen Eigenschaften des magnetischen Sektorfeldes und des elektrischen Radialfeldes berechnet unter der Annahme einer scharfen Begrenzung der Felder, die mit der geometrischen Begrenzung zusammenfällt. Tatsächlich treten jedoch Streufelder auf, deren ionenoptische Wirkung berücksichtigt werden muß. Nach Herzog /31/ ist ein Streufeld exakt berechenbar, wenn es durch eine Blende begrenzt wird. Position der Blende oder Blendendurchmesser sind im Prinzip frei wählbar /32, 33/. Nach Festlegung der Größen läßt sich die ionenoptische Wirkung des Streufeldes und damit des gesamten Feldes berechnen. Die durch das gesamte Feld bewirkte Abbildung, kann man sich durch ein homogenes Ersatzfeld mit rechteckförmiger Feldverteilung erzeugt denken. Das Ersatzfeld erstreckt sich um η bzw. ξ über die geometrische Begrenzung der Felder hinaus (Abb. 4). Mit Kenntnis von η und ξ lassen sich sofort die Abmessungen der Polschuhe und der Kondensatorplatten angeben.

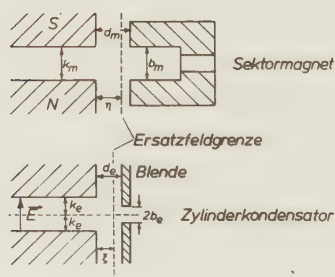


Abb. 4. Anordnung der Streufeldblenden des Sektormagneten und des Zylinderkondensators.

Für das magnetische Sektorfeld besteht die Streufeldblende aus einem hufeisenförmigen Eisenschluß (Abb. 4). Bei hinreichend großem Blendenabstand d_m kann die magnetische Sättigung des Blendenmaterials vermieden werden. Hier wurde $d_m/k_m = 0,5$ gewählt ($k_m = 20$ mm). Mit $b_m/k_m = 1$ ergibt sich ferner $\eta = 0,2 k_m / 32/$.

Für den Zylinderkondensator (Plattenabstand $2 k_e = 20$ mm) wurde die Streufeldblende so ausgelegt, daß der Ersatzfeldrand mit der geometrischen Begrenzung der Kondensatorplatten zusammenfällt: $\xi = 0$. Es ergibt sich damit für den Blendenabstand $d_e = 0,4 k_e$ und für die Blendenweite $2b_e = 0,5 k_e / 33/$.

3. Experimenteller Aufbau

3.1 Primärionen

Zur Erzeugung der Primärionen stand ein 300 keV Ionenbeschleuniger zur Verfügung, der i. allg. mit einer Edelgasionenquelle bestückt ist /34/. Mittels einer Hochtemperaturionenquelle konnten ausserdem Ionen fester Stoffe erzeugt werden, z. B. Au^+ und Cu^+ /35, 36/.

Der massenanalytierte Primärstrahl wurde durch die Blenden B_1 bzw. B_5 kollimiert (Abb. 5). Alle Blenden konnten in der Ebene senkrecht zum Ionenstrahl justiert werden. Die Blenden B_3 , B_4 , B_5 bilden zusammen mit einem Schließer S einen Faradaykäfig, mit dem der Ionenstrom gemessen wurde. Durchmesser und Abstände der Blenden sind in Tab. 2 zusammengestellt. Die Blendenanordnung begrenzte die maximale Divergenz des Ionenstrahls auf $0,5^\circ$. Bei allen Versuchen wurde mit einer Primärenergie von 150 keV gearbeitet. Die Strahlstromdichte betrug - falls nicht anders erwähnt - stets etwa $150 \mu A/cm^2$. Bei einem Restgasdruck von 6×10^{-7} Torr in der Umgebung des Targets war damit die Anzahl der pro Zeit- und Flächeneinheit auf die Oberfläche auftreffenden Ionen etwa viermal größer als die Anzahl der auf-

treffenden Restgasatome ($M = 28$) /2/. Da ferner die Haftwahrscheinlichkeit für die Restgasatome kleiner als eins ist und die Zerstäubungsausbeute für Wolfram viel größer als eins ist /22, 37 - 39/, kann die Forderung einer geringen Oberflächenbedeckung als ausreichend erfüllt angesehen werden. Der Sauerstoff-Partialdruck (5×10^{-8} Torr) war hinreichend gering, so daß die Sekundärionenausbeute bei geringen Änderungen des Sauerstoff-Partialdrucks oder der Stromdichte des Primärstrahls nicht merklich beeinflusst wurde /40 - 42/.

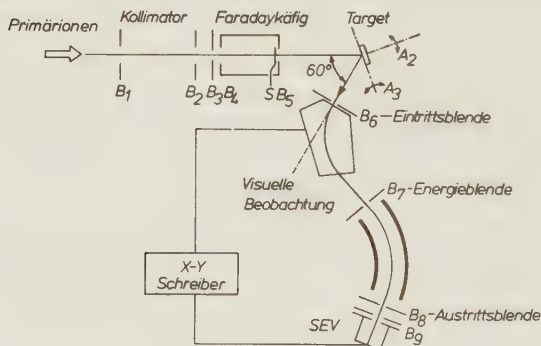


Abb.5. Gesamtaufbau der Apparatur (schematisch).

Tab. 2. Durchmesser und Abstände der den Primärstrahl begrenzenden Blenden.

	B_1	B_2	B_3	B_4	B_5
Durchmesser [mm]	3	3	2,5	2,7	2,6
	$\overline{B_1 B_2}$	$\overline{B_2 B_3}$	$\overline{B_3 B_4}$	$\overline{B_4 B_5}$	$\overline{B_5 T}$
Abstand [mm]	340	135	5	95	370

3.2 Vorbehandlung, Halterung und Orientierung der Wolfram-Proben

Die polykristallinen Proben hatten eine Größe von $10 \times 20 \times 1$ mm. Die mittlere Korngröße von etwa $50 \mu\text{m}$ ist klein gegen den Durchmesser des Primärstrahls. Die einkristallinen Proben hatten einen Durchmesser von 6 mm und eine Länge von 4 mm. Alle Proben wurden zunächst auf einer Vibrationspoliermaschine / 43/ mechanisch poliert (Korngröße des Schleifmittels Al_2O_3 : $\leq 3 \mu\text{m}$) und anschließend electropoliert /44/.

Die Proben wurden in einem Kupferblock gehaltert, dessen Temperatur mit einem Thermoelement gemessen werden konnte. Die Halterung war so ausgelegt, daß die montierte Probe sowohl in die Laue-Kammer als auch in das 3-achsige Goniometer in der Targetkammer reproduzierbar eingebaut werden konnte. An Hand der Symmetrie der Laue-Aufnahme konnten die untersuchten (110) Wolfram-Einkristalle mit einer Genauigkeit von $\pm 2^\circ$ orientiert werden. Die Reproduzierbarkeit der Goniometereinstellung betrug $\pm 1^\circ$.

Das Goniometer wurde in der Targetkammer isoliert montiert, so daß der Targetstrom registriert werden konnte. Dieser durch Sekundärelektronenmission und andere Einflüsse verfälschte Strom wurde lediglich zur Kontrolle der Konstanz des Primärionenstrahls benutzt.

Der Winkel zwischen Primärionenstrahl und der Eintrittsachse des Spektrometers betrug 60° (vgl. Abb. 5). Der Schnittpunkt der Rotationsachsen des Goniometers lag in der Probenoberfläche. Ein genaues Positionieren der Probe erfolgte durch Verschieben des Goniometers in allen drei Raumrichtungen. Die Orientierung der Proben bezüglich des Primärionenstrahls und des Massenspektrometers wird im folgenden am Beispiel eines (110) Wolfram-Einkristalls beschrieben (Abb. 6). Die von der kristallo-graphischen Struktur der Probe unabhängigen Winkelangaben gelten entsprechend für die polykristallinen Proben.

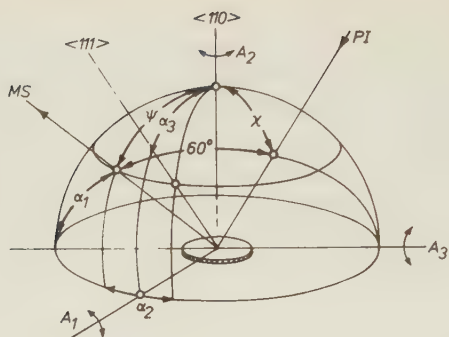


Abb. 6. Rotationsachsen des Goniometers und Probenorientierung. MS = Eintrittsachse des Spektrometers; PI = Primärionenstrahl.

Die Rotationsachse A_1 lag senkrecht zur Oberflächennormalen. Der Drehwinkel α_1 wird gemessen zwischen der Targetoberfläche und der Achse des Massenspektrometers. Die Drehachse A_2 war parallel zur Oberflächennormalen, der Drehwinkel α_2 wird gegen die (110)-Ebene gemessen. Während α_1 und α_2 im Betrieb variiert werden können, wird α_3 vor dem Experiment auf den gewünschten Wert eingestellt. α_3 ist der Winkel zwischen der Oberflächennormalen und der Meßebene, die vom Primärionenstrahl und der Spektrometerachse aufgespannt wird. Einfallswinkel und Emissionswinkel konnten nicht unabhängig voneinander variiert werden, da der Winkel zwischen dem Primärstrahl und der Beobachtungsrichtung fest war (60°). Der Einfallswinkel des Primärstrahls χ und der Emissionswinkel ψ , beide gemessen gegen die Oberflächennormale, berechnen sich aus α_1 und α_3 wie folgt

$$\left. \begin{aligned} \cos \chi &= \cos(\alpha_1 - 30^\circ) \cos \alpha_3 \\ \cos \psi &= \sin \alpha_1 \cos \alpha_3 \end{aligned} \right\} \quad (31)$$

Bei allen Messungen an polykristallinen Proben war $\alpha_3 = 0$, $\chi = 20^\circ$ und damit $\psi = 40^\circ$. Bei den Experimenten an Einkristallen wurde das Target mit Hilfe der Drehachse A_3 um

$\alpha_3 = 10^\circ$ gekippt. Dadurch konnte vermieden werden, daß die Meßebene parallel zu einer niedrigindizierten Gitterebene ist. Zur Messung der anisotropen Emission in $\langle hkl \rangle$ (vgl. 4.3.1) wurde α_1 so eingestellt, daß der Winkel ψ gleich dem Winkel zwischen $\langle 110 \rangle$ und $\langle hkl \rangle$ ist. Durch Variation von α_2 konnte die Winkelverteilung der Emission gemessen werden. Der Emissionswinkel α_{hkl} gemessen gegen $\langle hkl \rangle$ berechnet sich aus α_2 und ψ wie folgt

$$\cos \alpha_{hkl} = 1 - \sin^2 \psi (1 - \cos \alpha_2) \quad (32)$$

3.3 Aufbau des Spektrometers

Der Sektormagnet und der Zylinderkondensator waren so angeordnet, daß sie sowohl zueinander als auch gegenüber der Targetkammer justiert werden konnten. Dazu wurden der Magnet und der Kondensator je auf einem Justiertisch aufgebaut, der außer drei unabhängigen Translationen eine Drehung senkrecht zur Ablenkebene der Felder gestattete.

Um Abweichungen von der berechneten Brennweite des Zylinderkondensators, verursacht etwa durch mechanische Ungenauigkeiten bei der Herstellung der Kondensatorplatten oder durch schiefen Eintritt in den Kondensator /45/, kompensieren zu können wurden, wie in Abb. 7 dargestellt, oberhalb und unterhalb der Kondensatorplatten A ($r_A = 310$ mm) und B ($r_B = 290$ mm) zwei Hilfselektroden angebracht (Abstand $5t/4 = 50$ mm). Durch Anlegen einer Spannung U_C an die Hilfselektroden konnte die Brennweite verändert werden /46/.

Damit die in den Zylinderkondensator eintretenden Ionen keine Energieänderung erfahren, wurde die Spannung $2U_O$ symmetrisch an die Platten angelegt. Die Spannungen $+U_O$ und $-U_O$ wurden von zwei Versorgungsgeräten (Keithley Mod. 241) geliefert, die in Schritten von 10 mV digital einstellbar sind und sowohl hohe Stabilität ($\Delta U_O / U_O < 10^{-5} / 24h$) als auch große Genauigkeit haben ($< 10^{-4}$). Die Energie E der Teilchen bei einer Spannung

$2U_0$ ist gegeben durch

$$E = U_0 / \ln(r_A/r_B) = 15 U_0 \quad (33)$$

Die Masse der Ionen mit einer Energie E wird durch die magnetische Induktion B im Luftspalt des Sektormagneten bestimmt

$$M = 1,4 \times 10^6 B^2 / E \quad (34)$$

mit M in atomaren Masseneinheiten, B in Tesla und E in Elektronenvolt. Die Einstellung der Induktion erfolgte mit Hilfe eines feldstabilisierten Magnetversorgungsgerätes (Bruker B-MNS 120/10 Si6 und B-H 11, Genauigkeit $\Delta B/B = 0,3\%$). Zur Aufnahme der Massenspektren war dieses Gerät mit einem Interval-Sweep-Zusatz ausgestattet ($\Delta B \leq 0,1$ T). Die größte noch meßbare Masse ist gegeben durch das Masse-Energie-Produkt des Magneten von 1 MeV u bei einer maximalen Feldstärke von 0,83 T.

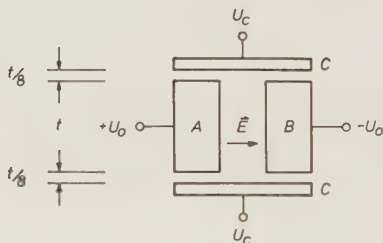


Abb. 7. Schnitt durch den Zylinderkondensator.

3.4 Sekundärionennachweis

Die analysierten Sekundärionen wurden zwischen der Blende B_9 (Abb. 5) und dem Eintrittsgitter des Detektors beschleunigt (Beschleunigungsspannung $U_B = 1 - 5$ kV). Als Detektor wurde

ein offener Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) (Bendix-Modell M-306) /47, 48/ verwendet.

Das Signal an der Anode des SEV wurde mit einem empfindlichen Elektrometer (Keithley Modell 602) gemessen und zusammen mit der Magnetinduktion mit einem X-Y Schreiber registriert. Der Dunkelstrom des SEV war kleiner als 10^{-12} A .

Das Verhältnis von Anodenstrom i_a des SEV zu dem auf die Kathode fallenden Ionenstrom i_k wurde für W^+ gemessen:

$i_a/i_k = \beta_1 \beta_e^v = 0,6 \times 10^6$, wobei β_1 die mittlere Sekundärelektronenausbeute der Kathode und β_e die der SEV-Dynoden und v die Zahl der Vervielfacherstufen ist. Für die Wolfram-Clusterionen W_n^+ mit $n > 2$ war der Ionenstrom zu gering, um noch direkt gemessen werden zu können. Aussagen über β_n können daher nicht gemacht werden. Bei den nachfolgenden Ergebnissen wurde angenommen, daß β_1 gleich β_n ist. Diese Annahme ist jedoch für die Deutung der Ergebnisse zunächst von untergeordneter Bedeutung.

3.5 Durchführung der Messungen und Fehlerbetrachtung

Die Messungen wurden so durchgeführt, daß bei einer festen Energie E das Massenspektrum der Sekundärionen aufgenommen wurde. Aus den Massenspektren bei verschiedenen Energien konnte dann für jede Masse ein Energiespektrum gewonnen werden. Die aus den Messungen erhaltene Energieverteilung $I_g(E)$ kann von der wahren Energieverteilung $I(E)$ aufgrund apparativer Einflüsse abweichen, hier durch das energieabhängige Energiefenster des Spektrometers. Die apparativen Einflüsse werden durch eine Apparatefunktion $g(E)$ beschrieben, die im allgemeinen empirisch bestimmt wird. Die gemessene Energieverteilung ist gegeben durch das Faltungsintegral

$$\int_{-\infty}^{\infty} I(E - E') g(E') dE' = I_g(E) \quad (35)$$

Aus der Konstanz der Energieauflösung $E/\Delta E = 1/2c$ kann $g(E)$ unter der Annahme einer Rechteckverteilung angegeben werden

$$g(E) = \begin{cases} 0 & \text{für } E' < E(1 - c) \\ 1 & \text{für } E(1 - c) \leq E' \leq E(1 + c) \\ 0 & \text{für } E' > E(1 + c) \end{cases} \quad (36)$$

Mit der Annahme einer Potenzfunktion für die wahre Energieverteilung (vgl. Abschn. 4.2.3)

$$I(E) = aE^{-n} \quad (37)$$

erhält man mit den Glgn. (35 - 37)

$$I_g(E) = I(E) E \left[(1 - c)^{1-n} - (1 + c)^{1-n} \right] / (n - 1)$$

Durch Potenzreihenentwicklung erhält man daraus

$$I(E) \approx I_g(E) / 2Ec(1 + n(n + 1)c^2/3!)$$

Bei der benutzten Anordnung war $2c = 0,03$. Damit gilt für $n < 5$ (vgl. 4.2.3) mit einer Genauigkeit von besser als 0,1%

$$I(E) \approx I_g(E) / 2cE \quad (38)$$

Alle Meßergebnisse müssen demgemäß entsprechend Glg. (38) korrigiert werden.

Der Fehler der Sekundärionenausbeute setzt sich zusammen aus dem Fehler der Sekundärionenintensität und dem des Primärstroms. Dabei muß unterschieden werden zwischen den Meßfehlern einerseits und systematischen Fehlern andererseits, die verursacht werden können durch nicht quantifizierbare Einflüsse (wie z. B. Oberflächenstruktur der Probe, an der Oberfläche absorbierten Verunreinigungen, Konzentration der Primärionen in der Probe (vgl. Abschn. 4.1)).

Der Primärionenstrom, der mit dem in Abschn. 3.1 beschriebenen Faradaykäfig gemessen wurde, konnte nur vor und nach der Aufnahme eines Massenspektrums gemessen werden (Meßzeit ca. 2,5 min). Schwankungen des Primärstroms innerhalb dieser Zeit betrugen maximal $\pm 5\%$. Über Schwankungen der Stromdichteverteilung des Primärstroms können keine direkten Aussagen gemacht werden.

Die Genauigkeit der Sekundärionenintensität hängt ab von der Konstanz des Verstärkungsfaktors des SEV, der Genauigkeit des Elektrometers und der Registrierung des Elektrometersignals mit dem X-Y Schreiber sowie von der Auswertung der Massenslinien. Die Schwankungen des Verstärkungsfaktor des SEV waren zumindest für die einzelnen Meßzeiten (Meßzeit ca. 10 Stunden) kleiner als $\pm 2\%$. Die Genauigkeit des Elektrometers betrug $\pm 2\%$ und bei Strömen kleiner als 10^{-11}A ca. $\pm 4\%$. Dabei sind bei kleinen Strömen ($< 10^{-10}\text{A}$) zusätzlich Nullpunktsschwankungen des Elektrometers zu berücksichtigen. Die Genauigkeit des X-Y Schreibers betrug $\pm 0,3\%$. Die Sekundärionenintensität wurde aus dem Massenspektrum durch Ausmessen der Peakhöhe der Massenlinie gewonnen. Dieses Verfahren war möglich, da Form und Halbwertsbreite der Massenlinie konstant waren. Die aufgrund von Überlegungen zur Ionenoptik des Spektrometers zu erwartende Konstanz der Linienform und der Halbwertsbreite wurde im interessierenden Energiebereich experimentell nachgewiesen; der Fehler war kleiner als $\pm 6\%$. Die Messung der Peakhöhe im Massenspektrum konnte bei großer Sekundärionenintensität mit einer Genauigkeit von $\pm 1\%$ durchgeführt werden, bei kleinen Intensitäten ist der Fehler größer (maximal $\pm 10\%$).

Aus der Reproduzierbarkeit der Messungen konnte in Übereinstimmung mit der oben angeführten Fehlerbetrachtung ein mittlerer Fehler der Sekundärionenausbeute von ca. $\pm 10\%$ ermittelt werden.

Bei Messungen der Winkelverteilung ist die schlechte Reproduzierbarkeit der Goniometereinstellungen ($\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$) von etwa $\pm 1^\circ$ zu berücksichtigen. Zusätzlich ist bei den Messungen an Einkristallen die Ungenauigkeit der Probenorientierung von $\pm 2^\circ$ zu beachten.

4. Meßergebnisse

4.1 Vorbemerkungen und Definitionen

Für die quantitative Beschreibung der bei der Zerstäubung emittierten Teilchen ist die Definition der Zerstäubungsausbeute und der Sekundärionenausbeute von Bedeutung. Die Zerstäubungsausbeute S ist das Verhältnis der Anzahl N der zerstäubten Atome (geladen und ungeladen) zur Anzahl N_P der Primärionen

$$S = N/N_P \quad (39)$$

Die positive (negative) Sekundärionenausbeute $K^{+(-)}$ ist dann das Verhältnis der Anzahl $N^{+(-)}$ der emittierten positiven (negativen) Ionen zur Anzahl N_P der Primärionen

$$K^{+(-)} = N^{+(-)} / N_P \quad (40)$$

Daraus erhält man den Ionisierungsgrad $\Gamma^{+(-)}$, das ist der Anteil der positiven (negativen) Ionen bezogen auf die Gesamtzahl der zerstäubten Teilchen

$$\Gamma^{+(-)} = K^{+(-)} / S = N^{+(-)} / N \quad (41)$$

Da von einer Festkörperoberfläche im allgemeinen eine große Anzahl verschiedener Sekundärionen emittiert wird, ist es zur genauen Beschreibung erforderlich, die Größen für jede Teilchenart zusätzlich anzugeben. In dieser Arbeit werden im allgemeinen nur positiv geladene Teilchen des reinen Targetmaterials

untersucht. Gemäß Glg. (41) hängt die Sekundärionenausbeute von der Zerstäubungsausbeute und dem Ionisierungsgrad ab. Die Zerstäubungsausbeute wird von den Beschußparametern (Energie, Masse und Einfallswinkel der Primärionen), den Emissionsparametern (Emissionswinkel und Energie), der Projektil-Target-Kombination sowie von der Targetstruktur bestimmt (z. B. /2 - 6/). Der Ionisierungsgrad Γ^+ hängt stark vom Targetmaterial /22/ ab. Die Unterschiede betragen mehrere Größenordnungen:

$$\Gamma^+(\text{Al}) = 2 \times 10^{-3}, \Gamma^+(\text{W}) = 5 \times 10^{-4}, \Gamma^+(\text{Au}) = 2 \times 10^{-6}.$$

Darüberhinaus üben die Versuchsbedingungen einen starken Einfluß auf den Ionisierungsgrad aus. Insbesondere können geringe Oberflächenkontaminationen Γ^+ stark verändern, d. h. Γ^+ kann vom Restgasdruck und der Primärionenstromdichte abhängen. Schließlich wird Γ^+ durch Anwesenheit chemisch aktiver Gase (z. B. Sauerstoff) stark erhöht /40 - 42, 49/. Quantitative Bestimmungen von Γ^+ wurden bisher nur vereinzelt und fast nie unter reproduzierbaren Bedingungen durchgeführt; deshalb waren bisher nur qualitative Aussagen möglich. Auch in den Untersuchungen der vorliegenden Arbeit können wegen der genannten Schwierigkeiten nur bedingt quantitative Aussagen in bezug auf die Zerstäubungsausbeute und den Ionisierungsgrad gemacht werden.

Beziehen sich die Messungen nicht auf die Gesamtausbeute, sondern wird - wie in dieser Arbeit - die Energieverteilung untersucht, so ist die Abhängigkeit der Größen S, K und Γ von der Energie zu berücksichtigen:

differentielle Zerstäubungsausbeute

$$s(E) = dN(E)/N_p dE \quad (42)$$

differentielle Sekundärionenausbeute

$$k^+(E) = dN^+(E)/N_p dE \quad (43)$$

differentieller Ionisierungsgrad

$$\gamma^+(E) = k^+(E)/s(E) \quad (44)$$

4.2 Untersuchungen an polykristallinem Wolfram

4.2.1 Typisches Massenspektrum

Abb. 8 zeigt ein typisches Massenspektrum der positiven Sekundärionen. Es wurde aufgenommen beim Beschuß mit Xenon-Ionen. Die Energie der Sekundärionen beträgt 30 eV. Mit der größten Intensität werden Wolfram-Ionen W^+ emittiert. Das einzige doppelt geladene Ion ist W^{2+} . Darüberhinaus enthält das Spektrum eine Vielzahl von Maxima bei einem Vielfachen der Wolfram-Masse, die Wolfram-Cluster W_n^+ . Alle Cluster sind einfach positiv geladen. Obwohl nur eine nm/pe-Analyse durchgeführt werden kann, folgt dies aus der Tatsache, daß für $n > 1$ ausschließlich Teilchen W_n^{p+} mit ganzzahligem Verhältnis $n/p = v$ ($v = 1, 2, \dots$) beobachtet wurden. Die maximale Clustergröße, die noch beobachtet werden konnte, war W_{12}^+ . Dazu ist zu sagen, daß diese Größe keine physikalische Grenze darstellt, vielmehr hängt sie von der Empfindlichkeit der Apparatur und anderen Parametern des Experiments ab (vgl. Abschn. 4.2.4). Bemerkenswert ist, daß die Intensität der Cluster $I(W_n^+) = I_n^+$ mit wachsender Anzahl der Atome in einem Cluster monoton abnimmt, $I_n^+ > I_{n+1}^+$. Oszillierende Häufigkeiten der Cluster mit relativen Maxima bei ungerader Anzahl von Atomen im Cluster wurden für Wolfram nicht beobachtet. Häufigkeiten derart, daß $I_{2n}^{+(-)} < I_{2n+1}^{+(-)}$ ist, wurden z. B. an Kupfer und Chrom /50/, Silber /26/ sowie Lithium und Kohlenstoff /51/ gemessen. Für die Elemente Be, Al, Mg, Si, Fe, Co, Ti und V /50 - 53/ nimmt jedoch die Clusterintensität mit steigender Clustergröße monoton ab.

Cluster vom Typ $W_n B_m^+$, die das Projektilatom B enthalten, konnten beim Beschuß mit Edelgasionen nicht nachgewiesen werden. Beim Beschuß mit Kupferionen dagegen konnte WCu^+ identifiziert werden. Es wurden weder Kupfer- noch Edelgascluster gefunden.

*) Zur Vereinfachung werden im folgenden die im Massenspektrum beobachteten Clusterionen kurz "Cluster" genannt.

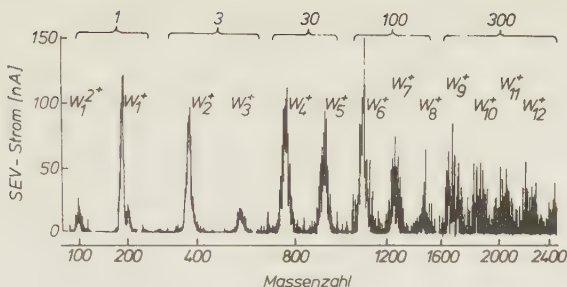


Abb. 8. Typisches Massenspektrum der positiven Sekundärionen bei der Zerstäubung von polykristallinem Wolfram mit 150 keV Xe^+ -Ionen. Sekundärionenenergie 30 eV.

Neben den targetspezifischen Ionen wurden auch Restgasionen (z. B. H_2^+ , C^+ , CH_n^+ , O^+ , OH^+ , C_2H_n^+) sowie ferner Wolframoxidionen WO^+ beobachtet.

Das Massenspektrum der negativen Sekundärionen zeigt keine negativen Ionen des Targetmaterials, d. h. weder W^- noch Clusterionen W_n^- (vgl. Abschn. 5.4). Nachgewiesen wurden Restgasionen (z. B. C^- , CH_n^- , O^- , OH^- , C_2^- , C_2H_n^-) und Wolfram-Oxidionen WO^- und WO_2^- .

4.2.2 Energieverteilung der Cluster bei Beschuß mit Xenon

In Abb. 9 ist die Energieabhängigkeit der W^+ -Intensität bei Beschuß mit Xe^+ dargestellt. Das bei einer Energie von 30 eV auftretende Maximum muß mit einer gewissen Vorsicht betrachtet werden, da durch den Einfluß von magnetischen Störfeldern die Intensitätsverhältnisse bei kleinen Energien verfälscht werden können. Für W^+ -Ionen einer Energie von 10 eV erhält man z. B. bei einem Störfeld von 10^{-4}T auf eine Entfernung von 1 m eine Ablenkung von 8 mm. Da die Länge der Apparatur etwa 1 m und die Höhe der Austrittsblende 10 mm betrug, ist eine Verfälschung der Intensität bei Energien von etwa 10 eV sehr wahrscheinlich. Die nachfolgenden Betrachtungen werden deshalb

auf Energien größer als ca. 30 eV beschränkt. Bezüglich der Lage eines Maximums von W^+ kann hier nur festgestellt werden, daß es, wenn überhaupt existent, vermutlich unterhalb 30 eV liegt.

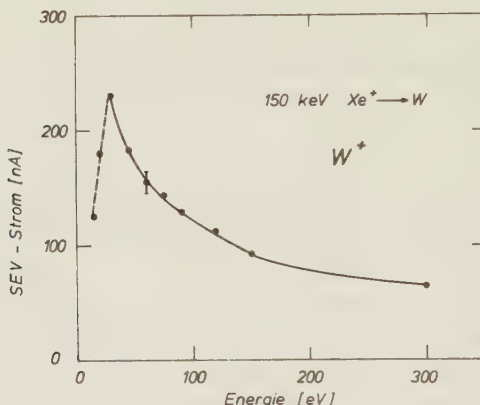


Abb. 9. Energieverteilung der zerstäubten W^+ -Ionen.

Abb. 10 zeigt die Energieverteilung von W_2^+ . Ein Maximum tritt im untersuchten Energiebereich nicht auf, es müßte - falls existent - unterhalb von 15 eV liegen. Die größeren Cluster W_3^+ , W_4^+ und W_5^+ zeigen ein ähnliches Verhalten. Für noch größere Cluster sind die Intensitäten bereits so klein, daß ihre Energieverteilung nicht mehr untersucht werden konnte.

Im Energiebereich von 30 bis 150 eV fällt die Intensität aller Sekundärionen exponentiell mit der Energie ab. Der exponentielle Abfall ist umso steiler je größer die Anzahl der Atome in einem Cluster ist (vgl. Abbn. 12 - 14).

Für Energien größer als etwa 100 eV gehorcht die Energieverteilung einem Potenzgesetz $I_n^+ \propto E^{-\nu}$, wobei die Potenz $\nu(n)$ mit wachsender Clustergröße zunimmt (Abb. 11). Für Cluster W_n^+ mit $n > 4$ war die Intensität zu klein, um noch Messungen der Energieverteilung durchführen zu können.

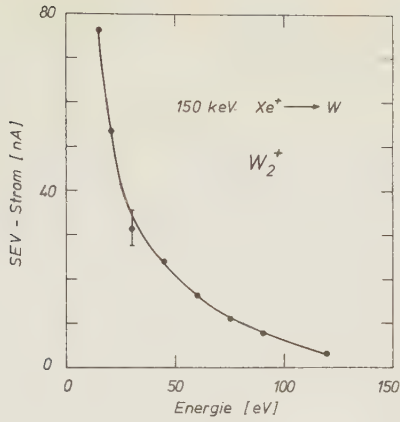


Abb. 10. Energieverteilung der W_2^+ -Cluster.

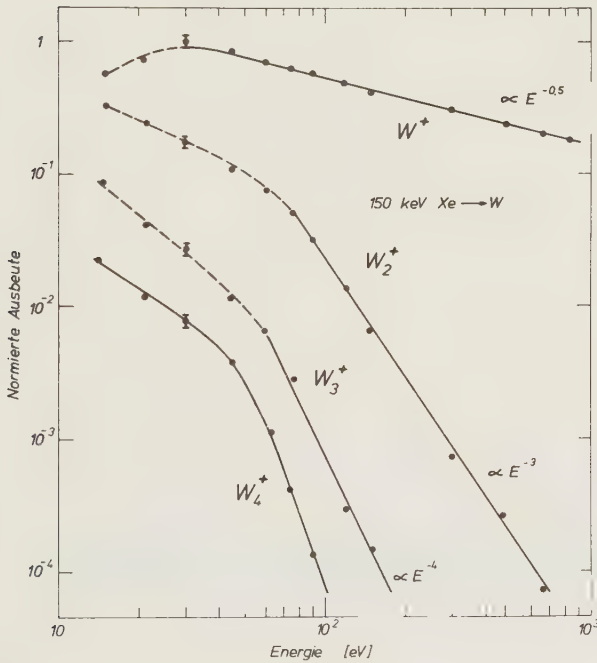


Abb. 11. Energieverteilung der Cluster W_n^+ mit $n \leq 4$.
Die Ausbeuten sind auf die W^+ -Ausbeute bei 30 eV normiert.

4.2.3 Abhängigkeit der Energieverteilung der Cluster von der Masse der Projektilionen

Zur Beantwortung der Frage, welche Bedeutung die Projektilmasse und damit die maximal übertragbare Energie für den Mechanismus der Clusteremission hat, wurden Experimente bei Beschuß mit He, Ne, Ar, Kr und Xe durchgeführt. Um eventuelle Unterschiede in der relativen Clusterausbeute und der Energieverteilung bei Beschuß mit Edelgasen einerseits und Metallionen andererseits zu ermitteln, wurden zusätzlich Cu^+ -Ionen zur Zerstäubung verwendet. Die Abb. 12 bis 14 zeigen die Energieverteilungen unterhalb von 150 eV. Unabhängig von der Projektilart ergibt sich für die Clusterintensität ein exponentieller Abfall mit der Energie, der umso stärker ist je größer die Cluster sind. Die relativen Clusterausbeuten dagegen nehmen mit abnehmender Projektilmasse ab.

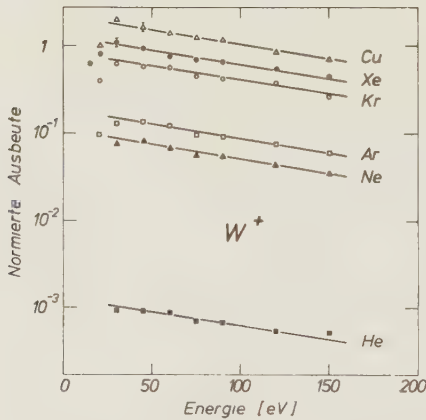


Abb. 12. Energieverteilung von W^+ bei Beschuß mit verschiedenen 150 keV Primärionen, normiert auf die Ausbeute für Xe^+ -Beschuß.

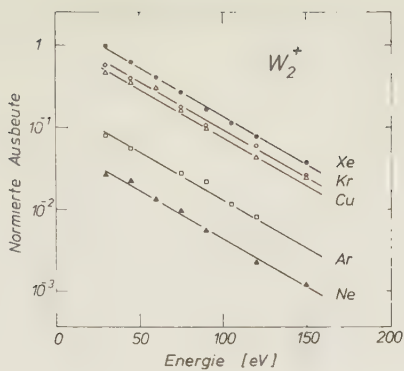


Abb. 13. Energieverteilung von W_2^+ bei Beschuss mit verschiedenen 150 keV Primärionen, normiert auf die Ausbeute für Xe^+ -Beschuss.

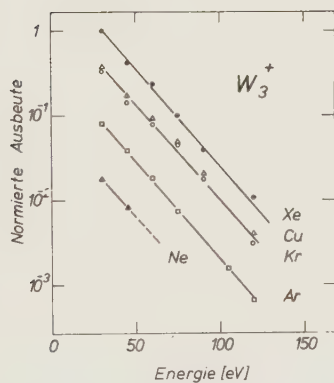


Abb. 14. Energieverteilung von W_3^+ bei Beschuss mit verschiedenen 150 keV Primärionen, normiert auf die Ausbeute von Xe^+ -Beschuss.

Mit einem bei konstanter Projektilenergie nur von der Masse M_1 der Projektile abhängigen Ausbeutefaktor $C_n(M_1)$ erhält man folgende Darstellung der Ergebnisse

$$I_n^+ = C_n(M_1) \exp(-E/E_n^*) \quad (45)$$

Die auf Xenon normierten Ausbeutefaktoren $C_n^{\text{rel}}(M_1)$ $= C_n(M_1)/C_n(\text{Xe})$ und die Exponentialfaktoren E_n^* sind in Tab. 3 zusammengestellt. Damit lassen sich in einer reduzierten Darstellung die bei verschiedenen Projektilen gefundenen Energieverteilungen der Cluster W_n^+ mit $n \leq 4$ zur Deckung bringen.

Tab. 3. Exponentialfaktoren E_n^* und relative Ausbeuten $C_n^{\text{rel}}(M_1)$ für verschiedene Projektile.

W_n^+	W_1^+	W_2^+	W_3^+	W_4^+
E_n^* eV	120	37	19	15
M_1	$C_1^{\text{rel}}(M_1)$	$C_2^{\text{rel}}(M_1)$	$C_3^{\text{rel}}(M_1)$	$C_4^{\text{rel}}(M_1)$
^{132}Xe	1	1	1	1
^{84}Kr	0,68	0,68	0,40	0,24
^{63}Cu	1,70	0,55	0,40	0,27
^{40}Ar	0,14	0,10	0,08	0,04
^{20}Ne	0,08	0,03	0,02	--
^4He	0,001	--	--	--

Ein entsprechendes Resultat wird für Energien größer als 100 eV gefunden (Abb. 15). Die Energieverteilung wird in diesem Energiebereich jedoch durch ein Potenzgesetz beschrieben (vgl. Abschn. 4.2.2)

$$I_n^+(E) = C_n^+(M_1) E^{-\nu} \quad (46)$$

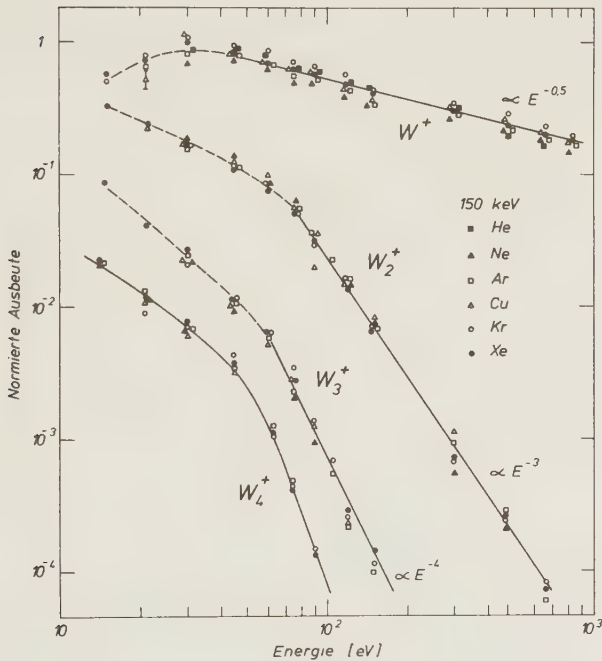


Abb. 15. Energieverteilung der Cluster W_n^+ mit $n \leq 4$ bei Beschuss mit verschiedenen Primärionen, normiert auf die W_1^+ -Ausbeute bei 30 eV für Xe-Beschuss.

Zusammenfassend kann man feststellen, daß im gesamten untersuchten Energiebereich die Energieverteilungen der Cluster W_1^+ , W_2^+ , W_3^+ und W_4^+ unabhängig von der Projektilmasse sind. Insbesondere sind auch die Energieverteilungen bei Beschuß mit Kupfer und Edelgasionen gleich.

4.2.4 Massenspektrum der Cluster bei Nachbeschleunigung

Für das Verständnis des Mechanismus der Zerstäubung ist neben der im vorangehenden Abschnitt diskutierten differentiellen Energieverteilung eine Kenntnis der Intensitätsverteilung, d. h. der integrierten Energieverteilung als Funktion der Clustergröße von Interesse.

Wie bereits beschrieben ist es aus Intensitätsgründen nicht möglich, diese Information für Clustergrößen direkt aus der differentiellen Energieverteilung zu gewinnen. Aus den Abb. 11 bis 15 kann man jedoch extrapolieren, daß für $n > 4$ die Halbwertsbreite der Verteilungen höchstens 10 eV beträgt. Aufgrund dieses experimentellen Ergebnisses bietet sich die Möglichkeit, mit Hilfe zusätzlicher Beschleunigung der Sekundärionen zwischen Target und Eingangsblende des Spektrometers einen beträchtlichen Intensitätsgewinn bei der Messung dieser Cluster zu erzielen. Die Beschleunigung (Potentialdifferenz U_B) der Sekundärionen (Energie E) wirkt sich in einer Verringerung der Emittanz der Sekundärionenquelle um den Faktor E/eU_B und einer Vergrößerung des Energiefensters des Spektrometers um den Faktor $(1 + eU_B/E)$ aus.

Für eine explizite Berechnung des Intensitätsgewinns durch Erniedrigung der Emittanz wäre neben einer Kenntnis der Emittanz auch die der Akzeptanz des Spektrometers erforderlich. Beide Größen sind jedoch nur qualitativ bekannt. Aus den qualitativen Daten kann man jedoch abschätzen, daß in erster Näherung der Intensitätsgewinn gleich der Verringerung der Emittanz ist. Insgesamt kann man also durch Beschleunigung langsamer Sekundärionen eine Intensitätssteigerung um den Faktor $(1 + eU_B/E)eU_B/E$ erwarten. Abb. 16 zeigt die Inten-

sitätsverteilung der Cluster W_n^+ im Bereich $6 \leq n \leq 34$ für Kr^+ - und Ne^+ -Beschuß für eine Beschleunigungsspannung von $U_B = 150$ V. Unabhängig von der Projektilmasse fällt die Clusterintensität mit wachsender Anzahl der Atome im Cluster schnell ab, im Bereich $10 < n < 34$ proportional zu $n^{-5,5}$. Ein ähnliches Ergebnis wurde auch für eine Beschleunigungsspannung von $U_B = 300$ V erhalten. Auf eine Analyse der Intensitätsverteilung kleinerer Cluster wurde hier verzichtet, da ein Einfluß der Energieverteilung der Cluster auf die Messergebnisse nicht ausgeschlossen werden kann.

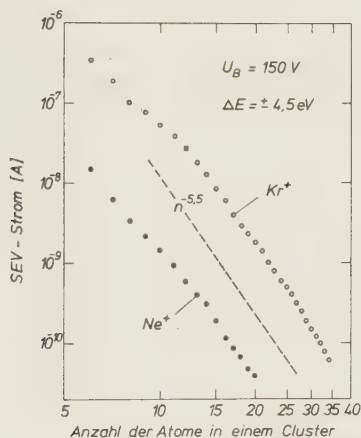


Abb. 16. Intensitätsverteilung der Cluster W_n^+ mit $6 \leq n \leq 34$ bei Nachbeschleunigung zwischen Target und Spektrometer. Beschleunigungsspannung U_B . Energiefenster ΔE .

4.2.5 Winkelabhängigkeit der Clusterintensität

Weitere Aussagen über den Zerstäubungsmechanismus und die Emission von Sekundärionen erhält man sowohl aus der Winkelverteilung der emittierten Teilchen als auch aus der Abhängigkeit der Ausbeute von Einschußwinkel der Primärionen.

Wie bereits in Abschn. 3.2 beschrieben, war der Winkel zwischen Primärstrahl und Spektrometerachse fest. Folglich konnten Einschußwinkel und Emissionswinkel nicht unabhängig voneinander eingestellt werden, wie es für eine eindeutige Messung der Winkelabhängigkeiten notwendig ist. Wird das Target um die Achse A_1 gedreht, so ändern sich der Einschußwinkel χ und der Beobachtungswinkel ψ ($\psi + \chi = 60^\circ$). Abb. 17 zeigt die Winkelabhängigkeit für ein polykristallines Target bei Argonbeschuß. Die Energie der Sekundärionen beträgt 45 eV. Mit steigendem Emissionswinkel ψ (und gleichzeitig abnehmendem Einschußwinkel χ) nimmt die Clusterausbeute stark ab und beträgt für $\psi = 60^\circ$ nur noch etwa 3%.

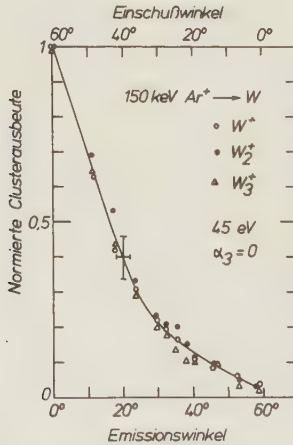


Abb. 17. Normierte Clusterausbeute bei gleichzeitiger Variation des Einschußwinkels χ und des Emissionswinkels ψ mit $\chi + \psi = 60^\circ$.

Bemerkenswert ist, daß die Cluster w_2^+ und w_3^+ die gleiche Winkelabhängigkeit zeigen wie w^+ . Bei höheren Emissionsenergien (gemessen wurde bis 150 eV) ist der Abfall mit steigendem ψ etwas geringer (10% für $\psi = 60^\circ$ und 150 eV), ohne daß sich der Kurvenverlauf wesentlich ändert.

4.2.6 Stromdichteabhängigkeit der Clusterintensität

Wie bereits in den Abschn. 3.1 und 4.1 erwähnt, hängt die Sekundärionenausbeute unter anderen Parametern von der Stromdichte ab. Um die in Abschn. 3.1 gemachten Annahmen nachzuprüfen, wurde die Stromdichteabhängigkeit der W^+ -Ausbeute gemessen. Abb. 18 zeigt das Ergebnis. Oberhalb ca. $50 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ besteht in guter Näherung ein linearer Zusammenhang zwischen Sekundärionenausbeute und Stromdichte der Primärionen.

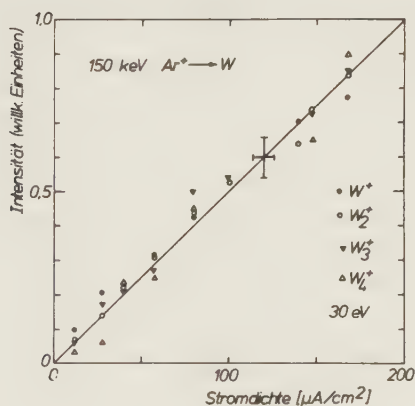


Abb. 18. Abhängigkeit der Clusterintensität von der Stromdichte der Primärionen für eine Clusterenergie von 30 eV.

Die Stromdichteabhängigkeit von Clustern ist bisher nicht systematisch untersucht worden. Abb. 18 kann man entnehmen, daß für die Cluster W_2^+ , W_3^+ und W_4^+ innerhalb der Fehlergrenzen ebenfalls ein linearer Zusammenhang zwischen Stromdichte und Ausbeute besteht (bei W_3^+ und W_4^+ ist der Fehler bei kleinen Stromdichten wegen der äußerst kleinen Intensitäten größer als oben angegeben).

Ausbeute $R_n^+(\alpha_{111}, 60 \text{ eV})$ als Funktion des Emissionswinkels α_{111} . Maxima treten auf bei Emission parallel zur $\langle 111 \rangle$ -Richtung. Bemerkenswert ist, daß $R_n^+(\alpha_{111}, E)$ mit wachsendem n zunimmt, obwohl die absoluten Intensitäten I_n^+ mit steigendem n schnell abnehmen (vgl. Abschn. 4.2.4). Zu erwähnen bleibt noch, daß eine anisotrope Emission nicht nur für einfach geladene Ionen und Cluster, sondern auch für doppelt geladene Wolfram-Ionen W^{2+} nachgewiesen werden konnte, die maximale normierte Ausbeute für W^{2+} ist etwa doppelt so groß wie für W^+ .

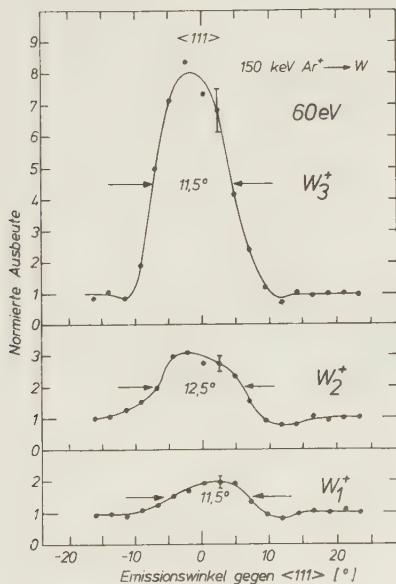


Abb. 20. Winkelverteilung der Clusterausbeute in $\langle 111 \rangle$ für eine Clusterenergie von 60 eV. Normierung auf den winkelunabhängigen Anteil.

Die volle Halbwertsbreite der anisotropen Emissionsverteilung ist unabhängig von der Art der Clustergröße, sie beträgt bei einer Energie von 60 eV ca. 12° . Die in den Winkelverteilungen angedeutete, aber nicht aufgelöste Struktur

kommt vermutlich dadurch zustande, daß der Primärstrahl während der Variation des Emissionswinkels unvermeidlicherweise (vgl. Abschn. 3.2) nahezu parallel zu einer niedrigindizierten Ebene einfällt, siehe Abb. 19.

Die Energieabhängigkeit der anisotropen Ausbeute $R_n(\alpha_{111}, E)$ wurde für W^+ , W_2^+ und W_3^+ im Bereich 30 - 240 eV untersucht. Dabei stellte sich heraus, daß die Halbwertsbreite der Winkelverteilung energieunabhängig ist; deshalb wurde die Energieabhängigkeit der anisotropen Ausbeutemaxima zum Vergleich herangezogen. Wie Abb. 21 zeigt, sind die Ausbeuteüberhöhungen für alle Clustergrößen bei ca. 60 eV am stärksten ausgeprägt. Für Energien größer als ca. 200 eV verschwindet der anisotrope Anteil von W^+ und W_2^+ . Bei W_3^+ waren die Intensitäten $I_3^+(\text{norm.})$ und $I_3^+(\alpha_{111})$ über 100 eV so klein, daß eine quantitative Bestimmung von $R_3(\alpha_{111}, E)$ nicht mehr möglich war. Aus dem Energiespektrum kann man jedoch extrapolieren, daß für Energien oberhalb ca. 130 eV ein anisotroper Beitrag zu W_3^+ nicht mehr zu erwarten ist. $R_4^+(\alpha_{111}, E)$ konnte nur noch für zwei Energien gemessen werden: $R_4^+(\alpha_{111}, 30 \text{ eV}) \approx 5$, $R_4^+(\alpha_{111}, 45 \text{ eV}) \approx 5,5$. Die Clusterintensitäten $I_n^+(\text{norm.})$ mit $n \geq 4$ waren ebenfalls so klein, daß die anisotrope Ausbeute mit dem derzeitigen experimentellen Aufbau nicht mehr gemessen werden konnte.

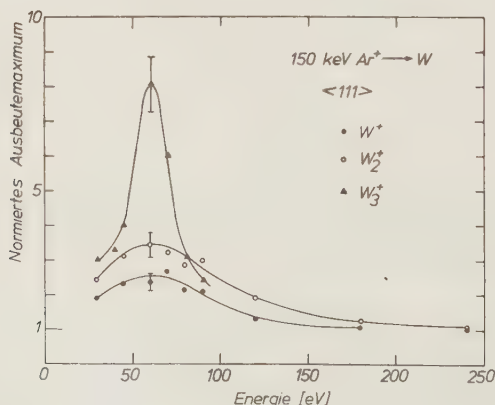


Abb. 21. Energieabhängigkeit der maximalen anisotropen Clusterausbeute in $\langle 111 \rangle$.

Für die Emissionsverteilung in $\langle 100 \rangle$ -Richtung liegen keine endgültigen Meßergebnisse vor. Erste Untersuchungen zeigen jedoch deutlich, daß auch in $\langle 100 \rangle$ Emissionsmaxima auftreten, und zwar für die Cluster W_n^+ mit $n \leq 3$. Die bisherigen Messungen, die sich auf zwei Energien (30 eV und 45 eV) beschränken, deuten darauf hin, daß die Emissionsmaxima bis zu 50% kleiner sind als in $\langle 111 \rangle$. Die Halbwertsbreite dagegen ist unabhängig von der Art der Sekundärionen ca. 25% größer als in $\langle 111 \rangle$.

4.3.2 Abhängigkeit der Clusterausbeute von der Einschußrichtung der Primärionen

In den vorangegangenen Messungen wurden die Primärionen parallel zu einer hochindizierten Richtung eingeschossen und die Emission in niedrigindizierte Richtungen gemessen. Bei den folgenden Messungen wird die Abhängigkeit der Emission in eine hochindizierte Richtung vom Einschußwinkel gegen die $\langle 111 \rangle$ -Richtung untersucht. Die Richtung der einfallenden Ar^+ -Ionen und die Emissionsrichtung, kann aus Abb. 20 durch Vertauschen der beiden Richtungen entnommen werden. Abb. 22 zeigt die Ausbeute für W^+ und W_2^+ in Abhängigkeit vom Einschußwinkel gegen $\langle 111 \rangle$ für eine Energie von 60 eV, normiert auf die Ausbeute bei Einschuß in hochindizierter Richtung.

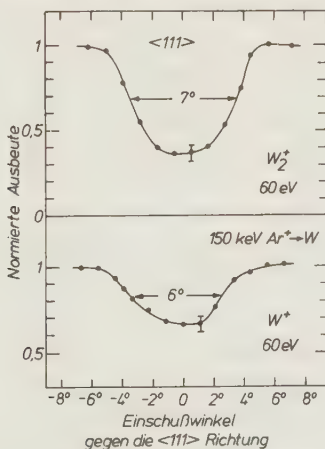


Abb.22. Abhängigkeit der Clusterausbeute vom Einschußwinkel der Primärionen gegen $\langle 111 \rangle$.

Man erkennt ausgeprägte Minima der Sekundärionenintensität mit einer vollen HWB von ca. 7° . Für W^+ ergibt sich ein Minimum von ca. 60% und für W_2^+ ein wesentlich tieferes Minimum von 35%. Der absolute Wert des Minimums, der von mehreren experimentellen Parametern abhängt, ist dabei von geringerem Interesse, als die Abhängigkeit des Minimums von der Clustergröße.

Abb. 23 zeigt die Energieabhängigkeit der Minimumausbeute im Energiebereich von 30 - 1000 eV. Bemerkenswert an diesem Ergebnis ist, daß die Emission von W^+ und W_2^+ mit Energien von 80 eV bis ca. 200 eV bei Einschuss in $\langle 111 \rangle$ weit weniger reduziert wird als im übrigen Energiebereich. Da die Unabhängigkeit der Halbwertsbreite von der Energie im einzelnen nicht nachgeprüft wurde, ist die Aussage der in Abb. 23 dargestellten Ergebnisse mit gewisser Vorsicht zu betrachten.

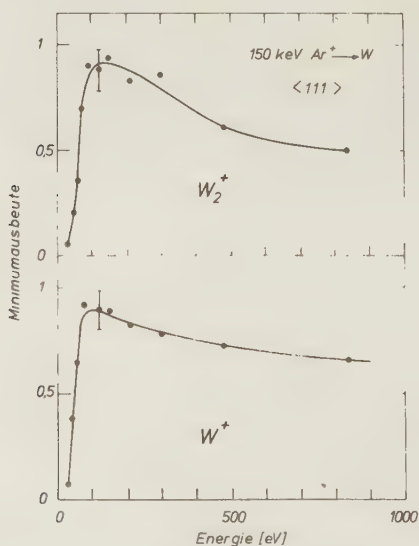


Abb. 23. Energieabhängigkeit der Minimumausbeute bei Beschuss parallel zu $\langle 111 \rangle$.

4.4 Oberflächenstrukturen

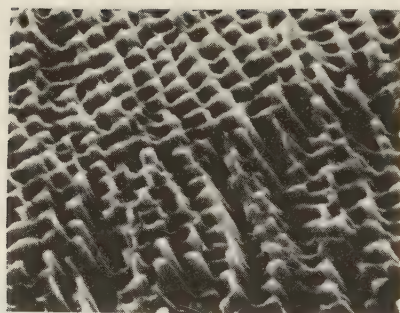
Abb. 24 zeigt eine Reihe von rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen der Oberflächen von Wolfram-Proben nach Beschuß mit einigen Edelgasionen sowie Cu^+ -Ionen^{*)}. Die Bestrahlungsfluenz mit den jeweils verwendeten Ionen war so hoch (10^{18} - 10^{19} cm^{-2}), daß man annehmen kann, daß die beobachtete Oberflächentopographie an der untersuchten Stelle den Gleichgewichtszustand bei der Zerstäubung repräsentiert.

Gleiche oder ähnliche Topographien wie in Abb. 24 wurden von zahlreichen Autoren beobachtet (z.B./2,4,89-91/). Bei der Diskussion der Oberflächenstrukturen sind folgende Größen von Bedeutung: Die Abhängigkeit der Zerstäubungsausbeute vom Einfallswinkel der Primärionen /89/, die kristallographische Orientierung der Proben /90/, Verunreinigungen /91/ und Gitterfehler /92/.

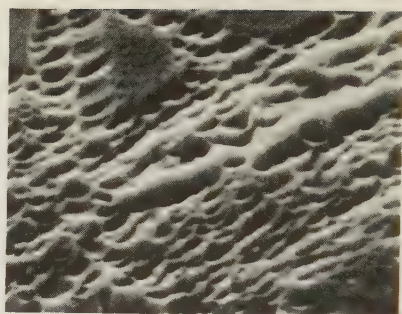
Bei der Analyse der beim Beschuß von polykristallinem Wolfram mit Ne, Ar, Kr, Xe und Cu entstandenen Oberflächentopographie konnten keine projektilabhängigen charakteristischen Unterschiede festgestellt werden. Die in Abb. 24a, b, c, e gezeigten Strukturen wurden für alle oben genannten Projektile erhalten. Ein völlig anderes Oberflächenbild erhält man beim Beschuß mit Helium (Abb. 24d). Deutlich ist eine Blasenbildung des eingeschossenen Heliums im Wolfram sowie das Aufplatzen der Blasen zu erkennen (Blistering)/54/. Abb. 24f zeigt die Oberflächenstruktur einer (110)-Oberfläche nach Beschuß mit Ar^+ -Ionen. Ein Vergleich der Abb. 24e u. f deutet darauf hin, daß bei der Zerstäubung von Einkristallen gegenüber Polykristallen keine neuen Strukturen auftreten.

Eine Abhängigkeit der Oberflächenstrukturen von der Masse der Projektile (bei gleicher Energie) wird von Sigmund /92/ diskutiert. Die laterale Ausdehnung von Kegeln sollte von der Größenordnung der Reichweite der Projektile sein (150 keV: He ($0,37 \mu\text{m}$), Ne ($0,072 \mu\text{m}$), Kr ($0,024 \mu\text{m}$)). Im vorliegenden Fall sind derartige Strukturen nicht eindeutig nachweisbar.

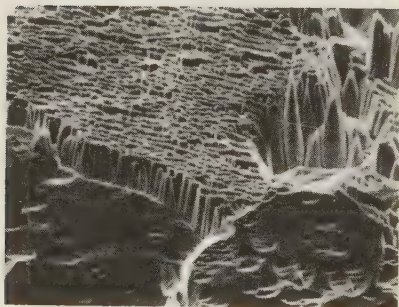
*)Die Aufnahmen wurden im Institut für Rasterelektronenmikroskopie (München) von Dr. H. Klingele angefertigt.



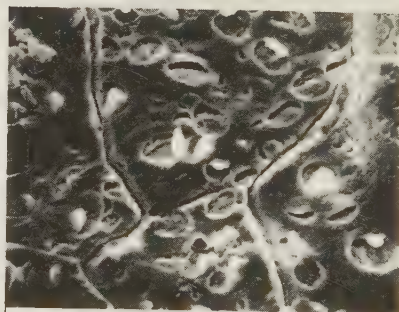
a) Ne^+ $\text{1 } \mu\text{m}$



b) Cu^+ $\text{1 } \mu\text{m}$



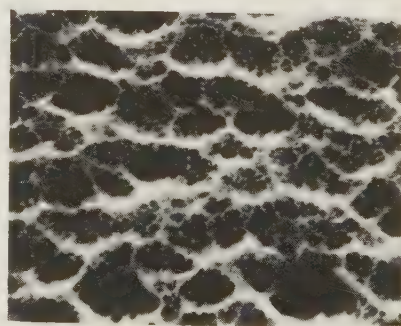
c) Kr^+ $\text{10 } \mu\text{m}$



d) He^+ $\text{5 } \mu\text{m}$



e) Ar^+ $\text{1 } \mu\text{m}$



f) Ar^+ $\text{1 } \mu\text{m}$

Abb. 24. Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von Wolfram-Oberflächen nach Beschuss mit verschiedenen 150 keV Ionen. Fluenz $10^{18} - 10^{19} \text{ cm}^{-2}$. (a) bis (e) polykristalline Proben, (f) einkristalline (110)-Probe.

5. Bisheriges Verständnis des Zerstäubungsvorganges und der Sekundärionenbildung

5.1 Zerstäubungsmodell für amorphe und polykristalline Substanzen

Neuere Zerstäubungstheorien gehen davon aus, daß der Zerstäubungsvorgang das Ergebnis von Vielfachstoßprozessen ist, die durch Stoßkaskaden beschrieben werden können. Das einfallende Primärion erleidet bei der Abbremsung im Target eine Anzahl von Stößen und erzeugt dabei Rückstoßatome. Rückstoßatome genügend hoher Energie produzieren eine neue Generation von Rückstoßatomen. Sowohl das Primärion als auch energiereiche Rückstoßatome können aus einer Tiefe, die einem Bruchteil der Ionenreichweite entspricht, in einer Folge von Stößen zur Oberfläche zurückgestreut werden. Entlang der Bahnen der Primärionen und der energiereichen Rückstoßatome wird eine große Anzahl niederenergetischer Rückstoßatome erzeugt. Diese tragen zur Emission bei, wenn sie mehr als die Bindungsenergie E_b an Oberflächenatome übertragen können. Niederenergetische Atome liefern den Hauptbeitrag zur Zerstäubungsausbeute, da die Energieverteilung der Rückstoßatome in der Kaskade mit der Energie E' wie E'^{-2} abfällt /7, 55/. Da die Oberflächenbindungsenergie klein ist ($E_b \lesssim 9$ eV /8/), spiegelt sich die Energieverteilung innerhalb der Kaskade näherungsweise in der Energieverteilung der zerstäubten Atome wieder /17 - 19/.

Nach Sigmund /7/ ist die Zerstäubungsausbeute S proportional zum nuklearen Bremsvermögen $S_n(E)$ und umgekehrt proportional zur Oberflächenbindungsenergie E_b . Bei senkrechtem Einschuß von Primärionen der Energie E und der Masse M_1 in ein Target mit Atomen der Masse M_2 gilt

$$S(E) = \text{const} \propto S_n(E)/E_b \quad (47)$$

Die Größe α hängt hauptsächlich vom Massenverhältnis M_2/M_1 und ferner vom Wechselwirkungspotential ab /7/. Eine weitere Abhängigkeit der Größe α von der Energie E der Primärionen

wurde bisher nur für den Fall $M_2/M_1 = 1$ berechnet /56/. Experimentelle Werte für α als Funktion der Projektilmasse wurden von Andersen und Bay /57, 58/ für Cu bestimmt. Die für $M_2/M_1 \gg 1$ beobachteten Abweichungen von den theoretischen Werten wurden auf Oberflächeneffekte und inelastische Wechselwirkung zurückgeführt.

Die Abhängigkeit der Zerstäubungsausbeute vom Einschußwinkel χ der Primärionen kann nach Sigmund /7/ näherungsweise dargestellt werden durch

$$S(\chi) = S(0) (\cos \chi)^{-f} \quad (48)$$

Der Exponent f hängt vom Massenverhältnis M_2/M_1 ab und liegt für $M_2/M_1 < 10$ zwischen 1,0 und 1,8. Es bleibt zu erwähnen, daß in der theoretisch berechneten Zerstäubungsausbeute alle emittierten Teilchen enthalten sind. Theoretische Untersuchungen über die Zerstäubungsausbeute bestimmter Teilchenarten, z. B. Cluster M_n des Targetmaterials M , gibt es bis heute nicht.

5.2 Modellvorstellungen zur anisotropen Zerstäubung von Einkristallen

Bei der Untersuchung der Zerstäubung von Einkristallen wurden Anisotropieeffekte sowohl bei der Untersuchung der Emissionsverteilung als auch bezüglich der Abhängigkeit von der Einschußrichtung gefunden. Zur Deutung der anisotropen Emission wurden das Fokussonenmodell /10,11,59,60/ bzw. das Oberflächenmodell /12/ herangezogen. Die Abhängigkeit der anisotropen Ausbeute von der Einschußrichtung ist auf korrelierte Streuung der Projektil entlang von dichtgepackten Gittergeraden zu verstehen (Channelling) /61,62/. Dabei ist die für die Zerstäubung wichtige nukleare Wechselwirkung stark reduziert bzw. erfolgt erst in größerer Tiefe aufgrund einer Großwinkelstreuung. Im Fokussonenmodell wird die anisotrope Emission dadurch erklärt, daß unter bestimmten Bedingungen

der Impuls eines Atoms in der Kaskade über mehrere Atomabstände entlang einer dichtgepackten Gittergerade transportiert werden kann. Eine Impulsfokussierung ist nur für Energien kleiner als die Fokussierungsenergie E_f möglich. In der Harte-Kugel-Näherung (HKN) ist mit einem vom Wechselwirkungspotential abhängigen Harte-Kugel-Radius

$$E_f = 2 A \exp(-D/2a) \quad , \quad (49)$$

wenn für das Wechselwirkungspotential ein Born-Mayer-Potential $V(r) = A \exp(-r/a)$ verwendet wird (siehe z. B. /9/). D ist der Abstand benachbarter Atome in der Kette. Für die Konstanten des Born-Mayer-Potentials gilt nach Andersen und Sigmund $62/A = 52(Z_1 Z_2)^{3/4}$ und $a = 0,219 \text{ \AA}$.

Die einschränkenden Bedingungen, z. B. die Fokussierungsenergie sowie die mögliche Reichweite der fokussierenden Stoßfolgen sind umstritten. Für die Diskussion der Ergebnisse dieser Arbeit kann jedoch festgehalten werden, daß auch neuere experimentelle Ergebnisse und Maschinenrechnungen einen wenn auch geringen Beitrag der Fokussionen zur gesamten Zerstörungsausbeute liefern /13, 14, 63/.

Im Oberflächenmodell wird zur Beschreibung der anisotropen Emission eine geordnete Struktur nur innerhalb der beiden obersten Atomlagen benötigt. Aufgrund der Existenz einer Oberflächenbindungsenergie $E_b > 0$ und der dominierenden Rolle niederenergetischer Rückstoßatome in der Kaskade übt die Oberflächenstruktur eine stark selektive Wirkung auf die Emission aus. Mit einem "Fokussierungsparameter" $\Lambda = \sqrt{E/E_f}$, der hier lediglich das verwendete Stoßgesetz repräsentiert, kann unter der Annahme einer isotropen Verteilung der Rückstoßatome proportional zu E^{-2} die Halbwertsbreite $\psi_{1/2}$ der Emissionsverteilung $S(\psi)$ abgeschätzt werden /12/

$$\psi_{1/2} = 1/(2 (1 + \sqrt{E_f/E_b})) \quad (50)$$

5.3 Sekundärionenausbeute bei der Zerstäubung

Wie bereits in Abschnitt 4.1 beschrieben, hängen der Ionisierungsgrad Γ^+ u. damit die Sekundärionenausbeute von zahlreichen experimentellen Parametern und von der Projektil-Target-Kombination ab /22,23,64,65/. Für den Vergleich mit den Ergebnissen dieser Arbeit existieren in der Literatur einige Ergebnisse von Messungen der Energieverteilung von Sekundärionen (vgl. Abschn. 6.2).

Systematische Untersuchungen der Abhängigkeit der Sekundärionenausbeute von der Masse und Energie der Primärionen liegen nicht vor. Theoretische Untersuchungen der Emission von Sekundärionen liefern voneinander abweichende Ergebnisse. Dies hat seinen Grund darin, daß die Betrachtungen von unterschiedlichen Voraussetzungen ausgehen. Unter der Annahme, daß ein zerstäubtes Teilchen die Oberfläche als Ion verläßt, kann es mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit durch Resonanzübergänge nahe der Oberfläche neutralisiert werden /66, 67/. Dann ergibt sich für die Wahrscheinlichkeit $W(v_{\perp})$, daß das Ion das Target ohne Rückneutralisierung verläßt

$$W(v_{\perp}) \propto \exp(-\text{const}/v_{\perp}) \quad . \quad (51)$$

Schroeer et. al. /68/ gehen davon aus, daß zerstäubte Teilchen die Oberfläche als neutrale Atome im Grundzustand verlassen. Eine Ionisierung kann dadurch zustande kommen, daß sich die Wellenfunktion des Valenzelektrons des zerstäubten Atoms beim Durchgang durch die Oberfläche ändert. Zunächst gehört das Valenzelektron des Atoms zum Leitungsband des Metalls. Verläßt das Atom die Oberfläche, so wird die Wellenfunktion des Valenzelektrons von der des Leitungsbandes in die des Valenzelektrons eines freien Atoms übergehen. Für den Ionisierungsgrad $\gamma^+(v)$ ergibt sich dann näherungsweise

$$\gamma^+(v) = [E_D / (I - \Phi)]^2 [h\nu / a(I - \Phi)]^{\mu} \quad (52)$$

wobei v die Geschwindigkeit des zerstäubten Atoms, I die Ionisierungsenergie, ϕ die Austrittsarbeit des Targetmaterials und E_b die Oberflächenbindungsenergie ist. a und μ sind Anpassungsparameter. Aus experimentellen Daten der Sekundärionenausbeute /22, 69/ wurde $a = 1,4\text{\AA}$ und $\mu = 2,4$ gefunden (vgl. Abschn. 6.2).

Ein weiterer Prozeß, der zur Ionisierung führen kann, ist bei Atomen denkbar, die die Oberfläche in einem angeregten Zustand verlassen. Durch Auger-Übergänge kann bei hinreichend großer Anregungsenergie ein Valenzelektron emittiert werden. Details dieses Vorganges wurden von Castaing /70/, Joyes /71 - 74/ und Blaise et. al. /75/ beschrieben.

Es erscheint fraglich, ob einer der oben genannten Prozesse allein zur Beschreibung der Sekundärionenemission ausreicht. Eine Entscheidung dieser Frage kann nur durch weitere experimentelle Untersuchungen der Sekundärionenausbeute und der Neutralteilchenausbeute herbeigeführt werden.

5.4 Clusteremission bei der Zerstäubung

Die ersten Beobachtungen von geladenen Clustern wurden von Honig /76/ bei der Zerstäubung von Silber mit 200 - 400 eV Kr^+ - und Xe^+ -Ionen gemacht. Ag_2^+ und Ag_3^+ wurden identifiziert. Das Auftreten von zweiatomigen Clusterionen wurde von mehreren Autoren für eine Vielzahl von Elementen beschrieben (z. B. /20,22,50,65/). Neutrale Cluster Cu_2 haben Woodyard und Cooper /77/ bei der Zerstäubung von Kupfer mit 100 eV Ar^+ -Ionen gefunden. Das Intensitätsverhältnis von Cu_2/Cu betrug ca. 5%. Die Emission von neutralen Alkali-Clustern Li_2 , Na_2 und K_2 bei der Zerstäubung mit 11 keV Ar^+ -Ionen wurde von Baede et.al. /78/ beobachtet. Die Trennung der Atome und Moleküle erfolgte in einem inhomogenen Magnetfeld. Der Ionennachweis wurde mittels Oberflächenionisierung durchgeführt.

Negative Clusterionen wurden von Krohn /79/ beim Beschuß von Cu, Ag, Au, Al, Sn, Ni und Cd mit 1,1 keV Cs^+ -Ionen gefunden. Die beobachtete Anzahl der Atome in einem Cluster M_n^- war $n \leq 5$. Bemerkenswert ist, daß für Ta und W keine negativen Cluster des reinen Targetmaterials, sondern nur Oxidionen vom Typ M_nO_m^- emittiert werden (vgl. Abschn. 4.2.1).

Negative Ag_n^- -Cluster wurden auch von Hortig et. al. /26/ beim Beschuß von Cs-bedampften Ag-Targets mit 15 keV Kr^+ -Ionen gefunden. Dabei konnten erstaunlich große Cluster, bestehend aus maximal 60 Ag-Atomen, nachgewiesen werden. Interessant ist der beobachtete Unterschied der Intensität von Clustern mit gerader bzw. ungerader Anzahl von Atomen:

$I(\text{Ag}_{2n}^-) < I(\text{Ag}_{2n+1}^-)$. Clusterintensitäten, die mit der Anzahl n der Atome in einem Cluster alternieren, wurden auch bei der Zerstäubung von C, Li, Ag, Cu und Cr gefunden /50, 51/, während für die Elemente Be, Al, Mg, Fe, Co, Ni, Ti und V die Clusterintensität mit steigendem n monoton abnimmt /50 - 53/.

Einige Autoren haben gezeigt, daß bei der Zerstäubung nicht nur Cluster des reinen Targetmaterials auftreten. Hernandez et. al. /53/ fanden bei der Zerstäubung von reinem Aluminium mit 10 keV Ar^+ -Ionen sowohl Argoncluster Ar_n^+ ($n \leq 6$) als auch Cluster vom Typ Al_nAr_m^+ mit $n \leq 2$ und $m \leq 6$. Ähnliche Ergebnisse wurden auch bei Messungen an Silizium erhalten.

Untersuchungen der Energieverteilung der bei der Zerstäubung emittierten Cluster wurden von Jurela und Perovic /20/ durchgeführt. Bei Beschuß mit 40 keV Ar^+ fällt die Intensität der Cluster Mn_2^+ , Co_2^+ und Al_2^+ mit steigender Energie wesentlich schneller ab als für die einatomigen Ionen. Ähnliche Resultate wurden auch für Silizium erhalten /80/. Dennis und MacDonald /21/ beobachteten bei der Zerstäubung von Kupfereinkristallen mit 10 keV Ar^+ -Ionen, daß die Energieverteilung der Cluster Cu_2^+ und Cu_3^+ bei 12 eV bzw. 8 eV ein Maximum aufweist. Der Intensitätsabfall für Cu_2^+ oberhalb von ca. 15 eV verläuft proportional zu $\exp(-E/E^*)$ mit $E^* \approx 12$ eV.

Schließlich sei noch eine Untersuchung von Tantsyrev et. al. erwähnt /81/. Bei der Zerstäubung von Eis, gefrorenem Methyl- u. Äthylalkohol sowie Ammoniak mit 1,5 keV Ar^+ -Ionen wurden folgende Cluster analysiert: $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_n$ mit $n \leq 30$, $\text{H}^+(\text{CH}_3\text{OH})_n$ mit $n \leq 6$, $\text{H}^+(\text{C}_2\text{H}_5\text{OH})_n$ mit $n \leq 4$ und $\text{H}^+(\text{NH}_3)_n$ mit $n \leq 30$. Dabei waren die Maximalwerte von n durch den magnetischen Analysator begrenzt. Bemerkenswert ist, daß im Fall des Methylalkohols $\text{H}^+(\text{CH}_3\text{OH})_3$ die größte Intensität aufweist. Im Gegensatz dazu nimmt für alle anderen Verbindungen die Clusterintensität mit steigender Atomzahl ab.

Die oben angeführten Messungen zahlreicher Autoren zeigen, daß bei der Zerstäubung von Festkörpern mit Primärionen unterschiedlicher Masse und Energie (100 eV bis 40 keV) positive, negative und neutrale Cluster emittiert werden, die u. U. aus einer sehr großen Anzahl von Atomen bestehen können. Die für verschiedene Elemente und für verschiedene Ladung unterschiedliche Intensitätsverteilung weist auf eine Abhängigkeit der Stabilität der Cluster von der Elektronenstruktur der Atome hin.

Zu diesem Ergebnis kommen Joyes und Leleyter /51, 82/ aufgrund von theoretischen Berechnungen der Stabilität der Cluster. Aus der näherungsweisen Berechnung der Energieniveaus der Cluster erhält man die Ionisierungsenergie E_i und die Elektronenaffinität E_a als Funktion der Anzahl n der Atome in einem Cluster und damit eine Aussage über die Stabilität der Cluster. Die Ergebnisse können wie folgt zusammengefaßt werden: Die Stabilität der Cluster bestehend aus Atomen mit zwei Valenzelektronen nimmt mit wachsendem n stetig ab. Besitzen die Clusteratome dagegen nur ein Valenzelektron, so ist die Stabilität der Cluster, die aus einer geraden Anzahl von Atomen bestehen, kleiner als die, die eine ungerade Anzahl von Atomen enthalten.

6. Diskussion

6.1 Vergleich der Sekundärionenausbeute und der Zerstäubungsausbeute

Für eine Interpretation der Ergebnisse dieser Arbeit ist es u. a. wünschenswert, die gemessenen Sekundärionenausbeuten als Funktion der Masse der Projektilionen mit Messungen der Zerstäubungsausbeute zu vergleichen. Zerstäubungsmessungen an Wolfram wurden jedoch bisher nur vereinzelt durchgeführt /37 - 39/. Es hat sich gezeigt, daß sich die experimentellen Daten für die Zerstäubungsausbeute von Cu recht gut durch die Sigmundsche Theorie /7/ beschreiben lassen, insbesondere ihre relative Änderung mit der Projektilmasse /57, 58/. Deshalb soll auch hier versucht werden, die gemessenen relativen Sekundärionenausbeuten mit den entsprechenden theoretischen Werten für die Zerstäubungsausbeute von Wolfram zu vergleichen. Aus Glg. (47) folgt für die relative Zerstäubungsausbeute bezogen auf den Wert bei Xe-Beschuß

$$S_{\text{rel}}^{\text{theor}} = \frac{S(M_1)}{S(\text{Xe})} = \frac{\alpha(M_2/M_1) S_n(E, M_1, M_2)}{\alpha(M_2/M_{\text{Xe}}) S_n(E, M_{\text{Xe}}, M_2)} \quad (53)$$

Unter Benutzung der nuklearen Bremskraft nach Lindhard (vgl. /7, 83/) und experimenteller Daten für die M_2/M_1 -Abhängigkeit von α /57/ erhält man den in Abb. 25 dargestellten Verlauf von $S_{\text{rel}}^{\text{theor}}$ für Wolfram. Ferner sind die aus Tab. 3 entnommenen relativen Ausbeutefaktoren $C_1^{\text{rel}}(M_1)$ für W^+ eingetragen. Im Rahmen der Genauigkeit der experimentellen und theoretischen Daten stimmen die gemessenen Werte für Beschuß mit Edelgasen gut mit dem berechneten Verlauf überein. Daraus kann man schließen, daß der Ionisierungsgrad Γ^+ nicht von der Masse der Projektil abhängt. Ein solcher Effekt wäre auch nur dann zu erwarten gewesen, wenn sich bei der Zerstäubung eine hohe Gleichgewichtskonzentration der Edelgasatome im Target aufgebaut hätte. Darüberhinaus ist auch die gleichmäßige chemische Inaktivität der Edelgase ein möglicher Grund für die Konstanz von Γ^+ .

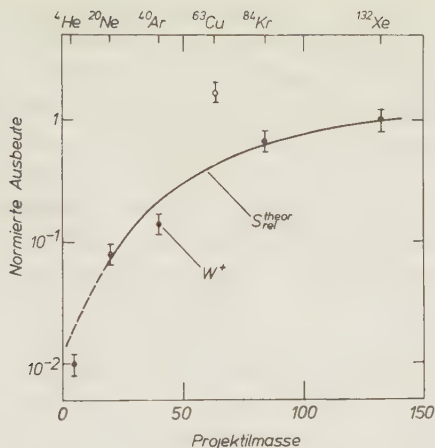


Abb. 25. Projektilabhängigkeit der berechneten relativen Zerstäubungsausbeute und der gemessenen relativen W^+ -Ausbeute. Normierung auf Xenon.

Starke Abweichungen von diesem Verhalten wären vermutlich bei Beschuß mit dem chemisch aktivem Sauerstoff zu beobachten gewesen. Bestrahlung mit Sauerstoffionen ist ebenso wie Zerstäubung in Sauerstoffatmosphäre eine bekannte Methode zur Erhöhung des Ionisierungsgrades um mehr als eine Größenordnung /40-42, 49/. Ein chemischer Effekt könnte auch die Ursache sein für die deutliche Abweichung der relativen Ausbeute von W^+ bei Beschuß mit Cu^+ -Ionen (Abb. 25). Unterschiede in der Oberflächenstruktur können dagegen als Ursache weitgehend ausgeschlossen werden, da in den rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen gleiche Strukturen bei Beschuß mit Edelgasen und Kupfer gefunden wurden (vgl. Abb. 24). Ebenso ist wegen der hohen Selbstzerstäubungsausbeute von Kupfer im Vergleich zur Zerstäubungsausbeute von Wolfram mit Kupfer /2/ ein Aufbau von Kupferagglomeraten an der Oberfläche unwahrscheinlich /91/.

Ein entsprechender Vergleich wie in Abb. 25 für W^+ ist in Abb. 26 für W_2^+ , W_3^+ und W_n^+ aufgetragen. Die Daten für W_2^+ und W_3^+ sind wieder der Tab. 3 entnommen, während die mit W_n^+ bezeichneten Punkte ein Vergleich der Ausbeuten für Cluster mit $10 \leq n \leq 20$ bei Beschuß mit Ne^+ bzw. Kr^+ darstellen (vgl. Abb. 16). Dabei wurde der Wert W_n^+ für Kr^+ -Beschuß wegen mangelnder Ergebnisse für Xe^+ auf den theoretischen Wert normiert. Das bedeutet, daß die W_n^+ -Ausbeute für Ne^+ -Beschuß eher noch kleiner ist als in Abb. 26 eingetragen.

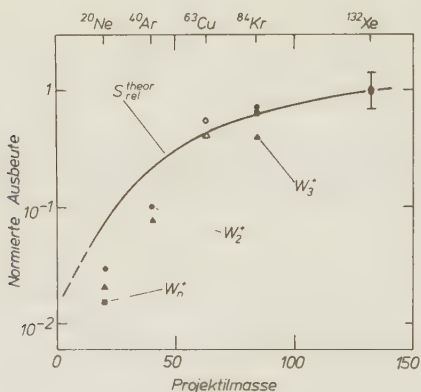


Abb. 26. Projektilabhängigkeit der berechneten relativen Zerstäubungsausbeute und der gemessenen W_n^+ -Ausbeute. Normierung auf Xenon.

Da ferner für Cluster mit $n \geq 2$ eine Extrapolation der Energieverteilung zu Energien $E < 30$ eV nur mit Einschränkung möglich ist (vgl. Abschn. 4.2.3) können die Daten in Abb. 26 nur bedingt für einen Vergleich mit der Zerstäubungsausbeute herangezogen werden. Außerdem wurde vorausgesetzt, daß wie im Fall von W^+ auch für W_n^+ der Ionisierungsgrad $\gamma_n^+(E)$ für Edelgase nicht von der Masse der Projektile abhängt.

Es kann jedoch festgestellt werden, daß alle experimentell gefundenen Werte der Clusterausbeute kleiner sind als die der Zerstäubungsausbeute. Darüberhinaus werden die Abweichungen von der theoretischen Kurve sowohl mit wachsender Anzahl der Atome in einem Cluster als auch mit steigendem Massenverhältnis M_2/M_1 immer größer. Beide Effekte lassen sich vermutlich darauf zurückführen, daß die Clusterausbeute nicht von der mittleren Zahl der zerstäubten Atome (Ionen) abhängt, sondern vielmehr von der Anzahl, die bei einem Einzelprozeß emittiert werden. Wie Westmoreland und Sigmund /84/ gezeigt haben ist wegen der Reichweitestreuung der Projektilionen auch die mittlere Zerstäubungsausbeute Schwankungen unterworfen, die mit steigendem M_2/M_1 größer werden. Für $M_2/M_1 = 4$, d. h. für die Zerstäubung von Wolfram mit Argon, betragen die Schwankungen etwa eine Größenordnung.

Daß die Clusterausbeute von W_2^+ und W_3^+ für Cu^+ -Beschuß innerhalb der Fehlergrenzen auf die theoretische Kurve fällt und nicht wie im Fall von W^+ größer als der theoretische Wert ist, bedeutet wohl eine zufällige Übereinstimmung. Denn eine vergrößerte W^+ -Ausbeute bewirkt gemäß dem statistischen Modell der Clusterbildung (vgl. Abschn. 6.2) auch eine erhöhte Clusterausbeute. Die Erhöhung im Fall des Beschusses mit Kupferionen könnte jedoch durch die oben genannte Erniedrigung der Clusterausbeute gerade kompensiert werden.

6.2 Deutung der Energieabhängigkeit der Clusterausbeute

Für eine Interpretation der Bildung von Clustern bei der Zerstäubung kommt eine thermodynamische Betrachtungsweise - wie sie in einer Dampfatosphäre bei hohen Temperaturen angemessen ist - nicht in Frage, da die kinetische Energie der beobachteten Cluster ($E > 15$ eV) wesentlich größer ist als denkbare thermische Energien (0,9 eV für $T = 10^4$ K).

Die Tatsache, daß beim Beschuß mit Edelgasionen einerseits und beim Beschuß mit Cu^+ -Ionen andererseits kein Unterschied in der Emission von Clustern gefunden wurde (vgl. Abschn. 4.2.3) zeigt, daß eine Blasenbildung der eingeschossenen Edelgasionen im Target nicht merklich zur Clusteremission beiträgt. Dies gilt insbesondere für den Fall des Beschusses mit He^+ , für den anhand der rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen eine Blasenbildung eindeutig nachgewiesen wurde (vgl. Abb. 19).

Die in dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse zeigen, daß das Energiespektrum der Cluster unabhängig ist von der Masse der Projektile und damit auch unabhängig von der bei einem Einzelstoß zwischen Projektil- und Targetatom übertragenen maximalen Energie. Es soll nun versucht werden, die Clusteremission mit einem kinetischen Modell zu beschreiben. Grundlage dieses Modells ist die Voraussetzung, daß Cluster durch Stoßkaskaden erzeugt werden.

Tritt eine Stoßkaskade durch die Oberfläche des Festkörpers, so besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit dafür, daß auf zwei oder mehrere benachbarte Oberflächenatome zur "gleichen" Zeit der "gleiche" Impuls übertragen wird. In einem solchen Fall ist es wahrscheinlich, daß die Atome die Oberfläche als ein Cluster verlassen, da dieser Prozeß eine geringere Energie erfordert, als die Emission von getrennten Atomen. Die einfachste Annahme, die gemacht werden kann, ist, daß die Wahrscheinlichkeit $P_n(E'_n)$ für die Bildung eines Clusters aus n Atomen mit der kinetischen Energie $E_n = E'_n - E_b(n)$ ($E_b(n)$ = Oberflächenbindungsenergie für das Cluster) proportional ist zur n -ten Potenz der Wahrscheinlichkeit $P_1(E'_1)$ für die Emission eines einzelnen Atoms der Energie E'_1

$$P_n(E'_n) \propto P_1(E'_1)^n$$

mit $E'_n = n E'_1$.

(54)

Theoretisch erwartet man in der Stoßkaskade eine Intensitätsverteilung proportional $(E_1')^{-2}$ /7/. Damit läßt sich die Wahrscheinlichkeit für die Emission von Wolfram-Clustern angeben; es ist

$$P_n(E_n') \propto (E_1')^{-2n} \quad (55)$$

Eine Berechnung der gemessenen Intensität der Cluster $I_n^+(E)$ mit Hilfe von Glg. (55) ist zur Zeit nicht möglich. Dazu fehlen vor allem drei wesentliche Informationen:

- (1) Die Energieabhängigkeit der Clusterbildung ist unbekannt. Nur in einfachen Fällen ist eine Abschätzung möglich (s.u.).
- (2) Die Abhängigkeit der Oberflächenbindungsenergie von der Clustergröße ist ebenfalls unbekannt. Man kann lediglich annehmen $E_b(n) \leq n E_b(W)$ ($E_b = 8,8$ eV).
- (3) Die Energieabhängigkeit des Ionisierungsgrades $\gamma_n^+(E)$ ist nicht nur für mehratomige Clusterionen, sondern auch für einatomige Ionen unbekannt bzw. es existieren in den vorliegenden theoretischen Modellen große Diskrepanzen über den zu erwartenden Verlauf.

In Punkt (1) kann man folgende Abschätzung machen: Es werden zwei Wolfram-Atome zur "gleichen Zeit" (s. u.) mit den Impulsen $\mathcal{P}_1$ und $\mathcal{P}_2$ in verschiedene Richtung emittiert. Die Bildung eines Wolfram-Clusters W_2 ist möglich, wenn der Winkel α zwischen den Emissionsrichtungen kleiner ist als ein kritischer Wert α_k , der gegeben ist durch

$$\Delta \mathcal{P}_k^2 = (\mathcal{P}_1 - \mathcal{P}_2)^2 = 2mE_c \quad (56)$$

wobei E_c die Bindungsenergie von W_2 ist. Die Clusterintensität ist dann proportional zum zulässigen Raumwinkelelement Ω_k mit

$$\begin{aligned} \Omega_k &= 1 - \cos \alpha_k \\ &= [\Delta p^2 - (p_1 - p_2)^2] / 2p_1 p_2 \end{aligned} \quad (57)$$

und $\Delta p = |\Delta \mathcal{P}|$, $p_1 = |\mathcal{P}_1|$, $p_2 = |\mathcal{P}_2|$.

Man kann vermuten, daß i. a. W_2 -Cluster nur für $p_1 \approx p_2 = p$ gebildet werden. Dann erhält man aus Glg. (57)

$$\Omega_k(E) \approx \frac{\Delta p^2}{2p^2} = \frac{\Delta E_k}{4E} \quad (58)$$

mit $\Delta E_k = \Delta p^2/2m$ und $E = E_1 + E_2 = p^2/m$ (m = Masse des Wolfram-Atoms).

Nimmt man an, daß Glg. (58) die Energieabhängigkeit der Clusterbildung auch für größere Cluster beschreibt, dann kann man auf der Grundlage des statistischen Modells eine Abschätzung für die Energieabhängigkeit des Ionisierungsgrades $\gamma^+(E)$ durchführen. Das Ergebnis der Abschätzung ist in Tab. 5 dargestellt.

Tab. 5. Energieabhängigkeit der Clusterausbeute und des Ionisierungsgrades für $E \gg E_b(n)$, d. h. für $E' \approx E$.

Cluster- größe n	$P_n(E') \Omega_k(E)$ berechnet	$I_n^+(E)$ exp.	Gültigkeits- bereich	$\gamma^+(E)$ $\propto \frac{I_n^+(E)}{P_n(E') \Omega_k(E)}$
1	E^{-2}	$E^{-0,5}$	30 - 1000 eV	$E^{1,5}$
2	E^{-5}	E^{-3}	60 - 700 eV	E^2
3	E^{-7}	E^{-4}	60 - 150 eV	(E^3)
4	E^{-9}	E^{-6}	> 70 eV	(E^3)

Die so ermittelte Energieabhängigkeit von γ^+ kann nur als Anhaltspunkt bei der weiteren Diskussion benutzt werden. Für $n \geq 3$ ist zusätzlich zu den bereits genannten Einschränkungen auch noch der Gültigkeitsbereich der experimentellen Daten sehr eng und die Forderung $E' \approx E$ kaum erfüllt.

Weitere unbekannte Größen und Einflüsse und sonstige einschränkende Bedingungen, die bei der quantitativen Ermittlung der Ausbeute an Clusterionen bzw. der Bestimmung des Ionisierungsgrades berücksichtigt werden müssen, sollen nur noch kurz aufgezählt werden:

- (4) Die Stabilität geladener und ungeladener Cluster kann unterschiedlich sein.
- (5) Die Energieverteilung der Wolfram-Atome kann vom E^{-2} -Gesetz abweichen /85/.
- (6) Für die Clusterbildung ist nicht die durch die Zerstörungsausbeute gegebene mittlere Anzahl der emittierten Teilchen von Bedeutung, sondern die stark fluktuierende Anzahl der pro individueller Stoßkaskade emittierten Teilchen.
- (7) Die Größe der emittierenden Fläche ist ebenfalls von Bedeutung, da infolge von Randeffekten nur ein Teil der emittierten Intensität zur Clusterbildung beiträgt.
- (8) Eine starke Reduzierung der Clusterintensität resultiert aus der Bedingung, daß nur benachbarte Atome, die gleichzeitig und mit gleichem Impuls emittiert werden, einen Beitrag leisten.
- (9) Schließlich muß bei der Clusteremission auch noch die Bedingung der "Gleichzeitigkeit" erfüllt sein. Verlassen zwei Wolfram-Atome mit der gleichen Energie die Oberfläche in der gleichen Richtung, aber mit einer Zeitdifferenz Δt , dann ist die maximale Zeitdifferenz, die noch zu einem Cluster W_2^+ führt, gegeben durch

$$\Delta t_{\max} < 2a_0 \sqrt{M/2E} \approx 10^{-13} / \sqrt{E(\text{eV})} \text{ \{s\}} \quad (59)$$

wobei M die Masse der Wolfram-Ionen und $a_0 = 0,53 \times 10^{-8} \text{ cm}$ ist. Für eine Abschätzung des Gültigkeitsbereichs von Glg. (59) ist ein Vergleich mit der Lebensdauer der Stoßkaskade (Größenordnung 10^{-13} s) notwendig /86/.

Der Einfluß der in (6) und (7) genannten Bedingungen wird deutlich bei der Projektilabhängigkeit der relativen Cluster- ausbeute (vgl. Abschn. 6.1, Abb. 26).

Zum Vergleich der Ergebnisse dieser Arbeit mit experimentellen und theoretischen Untersuchungen anderer Autoren liegen nur wenige Veröffentlichungen vor.

Die von Jurela und Perović gemessenen Energieverteilungen einatomiger Ionen können durch ein Potenzgesetz $E^{-\nu}$ beschrieben werden /20/. Für die Größe ν wurden folgende Werte gefunden: Für Aluminium, Mangan und Tantal $\nu = 1,3$, für Kobalt $\nu = 0,5$. Messungen von MacDonald an Kupfer ergaben $\nu = 1,5$ /21/. Der in dieser Arbeit für Wolfram gefundene Wert $\nu = 0,5$ liegt also innerhalb des Wertebereichs $0,5 \leq \nu \leq 1,5$.

Leleyter und Joyes /51/ haben in einer quantenmechanischen Untersuchung gezeigt, daß die Stabilität der Cluster mit wachsender Clustergröße abnimmt. Diese Berechnungen wurden für geladene Cluster durchgeführt. Interessant wäre ein Vergleich der Stabilität von ungeladenen und geladenen Cluster. Berechnungen des Cu_2 -Moleküls von Joyes et. al. /87/ zeigen eine gute Übereinstimmung der theoretischen Werte für die Dissoziationsenergie und den Gleichgewichtsabstand mit experimentellen Ergebnissen. Entsprechende Daten für das Cu_2^+ -Ion wurden jedoch nicht angegeben.

Theoretische Berechnungen von Schroeder et. al. /68/ ergeben für die Energieabhängigkeit des Ionisierungsgrades ebenfalls ein Potenzgesetz (vgl. Abschn. 5.3). Aus Glg. (52) folgt $\gamma^+(E) \propto E^{\mu/2}$, wobei μ ein Anpassungsparameter ist. Der Parameter wurde mittels experimenteller Daten bestimmt. Mit den Werten für die Zerstäubungs- und die Sekundärionenausbeute von Beske /22/ und Werte für die mittlere Energie der zerstäubten Teilchen von Kopitzki und Stier /69/ konnte $\mu/2 = 1,2 \pm 0,15$ ermittelt werden. Zu diesem Verfahren ist zu bemerken, daß die Verwendung der Ergebnisse verschiedener Autoren aufgrund unterschiedlicher experimenteller Bedingungen zu nicht uner-

heblichen Fehlern führen kann. Weiter ist zu beachten, daß an Stelle des eigentlich zum Vergleich benötigten Ionisierungsgrades $\gamma^+(\bar{\nu})$ der Ionisierungsgrad Γ^+ benutzt wurde. Konsequenzen, die sich aus einem derartigen Vergleich ergeben, können offensichtlich nicht zum Beweis der Gültigkeit einer Theorie herangezogen werden.

Wie aus den vorausgegangenen Betrachtungen hervorgeht, sind weitere theoretische Untersuchungen notwendig, um zu einer quantitativen Beschreibung der Ionisierung bei der Zerstäubung zu gelangen. Erst mit der Kenntnis des Ionisierungsgrades der Cluster wird eine Auswertung der Ergebnisse dieser Arbeit möglich. Damit könnten dann Aussagen über die Bedeutung der Emission von Clustern bei der Zerstäubung gemacht werden.

6.3 Anisotrope Clusteremission

Eine qualitative Beschreibung der Anisotropie der Emission von W^+ und damit auch der für die Cluster W_2^+ und W_3^+ (Abb. 20, 21) ist mit Hilfe des Oberflächenmodells und des Fokussionenmodells möglich (vgl. Abschn. 5.2).

Die Winkelabhängigkeit der anisotropen Ausbeute von W^+ kann am besten im Oberflächenmodell beschrieben werden. Eine Abschätzung der Halbwertsbreite der Emissionsverteilung (vgl. Glg. (50)) liefert mit der Annahme einer isotropen Verteilung der Rückstoßatome und einer Bindungsenergie $E_b = 8,8$ eV für Wolfram einen Wert von $8,2^\circ$ ($\Lambda = \sqrt{E/E_f}$) bzw. 11° ($\Lambda = (E/E_f)^{1/3}$) /8, 12/. Die experimentellen Werte (vgl. Abb. 20) sind kleiner. Dies kann einerseits darauf zurückgeführt werden, daß die oben angegebenen Werte einer eher qualitativen Abschätzung entsprechen /8/ oder andererseits, daß Fokussionen zur anisotropen Ausbeute beitragen.

Die Energieabhängigkeit der anisotropen Ausbeute der Atome kann sowohl mit dem Oberflächenmodell als auch mit dem Fokussionenmodell erklärt werden. Im Oberflächenmodell erwartet man für den anisotropen Beitrag mit wachsender Energie E einen steilen Anstieg, bei einer Energie, die ungefähr der Oberflächenbindungsenergie E_b entspricht ein Maximum und für $E > E_b$ mit steigender Energie einen Abfall. Dieser Abfall ist proportional zu E^{-3} , wenn für die stoßenden Atome eine isotrope Verteilung proportional zu E^{-2} angenommen wird. Eine ähnliche Energieverteilung der anisotropen Ausbeute erhält man auch für das Fokussionenmodell. Dieses Modell liefert jedoch nur einen Beitrag für Energien, die kleiner sind als die Fokussierungsenergie E_f . Da auch für kleine Energien der Energieverlust der Fokussionen durch kollektive Gitterwechselwirkungen zunimmt /88/, ist für mittlere Energien ($2E_b < E < E_f$) der größte Beitrag zu erwarten. Wie bereits in Abschn. 5.2 erwähnt wurde, zeigen sowohl neuere Maschinenrechnungen /14,63/ und neue experimentelle Untersuchungen /13/, daß Fokussionen einen, wenn auch geringen Beitrag, zur Zerstäubungsausbeute liefern. Abschätzungen über die dem Fokussionenmodell und dem Oberflächenmodell zuzuschreibende Beiträge zur anisotropen Zerstäubungsausbeute von Einkristallen sind jedoch im allgemeinen nicht möglich.

Die oben ausgeführte qualitative Beschreibung der Energieabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute trifft auch für normierte W^+ -Ausbeute $R_1^+(\alpha_{111}, E)$ zu (vgl. Abb. 21). Daraus läßt sich ein Wert Fokussierungsenergie E_f von rd. 180 eV abschätzen, wenn man annimmt, daß das Oberflächenmodell bei dieser Energie keinen Beitrag mehr liefert. Ein Vergleich mit $E_f = 127$ eV, berechnet mit Hilfe der Harte-Kugel-Näherung (Glg. 49) zeigt, daß der experimentelle Wert zu groß ist. Insbesondere ist zu berücksichtigen, daß mit einem verbesserten Modell von Lehmann und Leibfried /59/ nur etwa halb so große Werte der Fokussierungsenergie wie für die HKN gefunden wurden. Die Aussage über die experimentell gefundene Fokussierungsenergie ist also dahingehend einzuschränken, daß der Wert von 180 eV sicher eine obere Grenze darstellt.

In wie weit aus der in Abb. 21 und 22 dargestellten normierten anisotropen Ausbeute für W^+ -Ionen

$$R_1^+(\alpha_{111}, E) = I_1^+(\alpha_{111}, E) / I_1^+(\text{norm.}, E)$$

Aussagen über die normierte Ausbeute der Atome

$$R_1^O(\alpha_{111}, E) = I_1^O(\alpha_{111}, E) / I_1^O(\text{norm.}, E)$$

gemacht werden können, hängt vom Unterschied des Ionisierungsgrades $\gamma_1^+(\alpha_{111}, E)$ für Emission in $\langle 111 \rangle$ und dem Ionisierungsgrad $\gamma_1^+(\text{norm.}, E)$ für Emission in eine hochindizierte Gitterrichtung ab. Eine Diskussion der Größe $\gamma_1^+(\alpha_{111}, E) / \gamma_1^+(\text{norm.}, E)$ würde zumindest die Kenntnis des Ionisierungsmechanismus voraussetzen und ist daher nicht möglich. Aus den oben angegebenen Gründen kann eine quantitative Analyse der Höhe und der Lage des Maximums der Energieverteilung der normierten W^+ -Ausbeute im Augenblick nicht durchgeführt werden.

Nach dem Oberflächenmodell ist, wie bereits erwähnt, eine Energieverteilung proportional zu E^{-3} zu erwarten. Nimmt man für die isotrope Ausbeute eine E^{-2} -Verteilung an, so ergibt sich für die normierte anisotrope Ausbeute der Atome $R_1^O(E) \propto E^{-1}$. Eine derartige Verteilung wurde von Dennis und MacDonald /21/ für die anisotrope Ausbeute der Cu^+ -Ionen für Energien oberhalb des Maximums gefunden. Auch das Energiespektrum der normierten Ausbeute der W^+ -Ionen (vgl. Abb. 21) kann oberhalb ca. 60 eV durch eine E^{-1} -Verteilung beschrieben werden. Beide Ergebnisse deuten darauf hin, daß in diesem Energiebereich das Verhältnis $\gamma_1^+(\alpha_{111}, E) / \gamma_1^+(\text{norm.}, E)$ unabhängig von der Energie ist.

Eine Interpretation der anisotropen Ausbeute der Cluster W_2^+ und W_3^+ wird vor allem dadurch erschwert, daß wie oben ausgeführt wurde, keine Daten über die anisotrope Emission von W-Atomen verfügbar sind. Abgesehen davon hat man es hier mit den gleichen Problemen wie bei der Deutung der anisotropen W^+ -Aus-

beute zu tun. Aus diesen Gründen muß hier auf eine quantitative Analyse des Energiespektrums der anisotropen Cluster- ausbeute verzichtet werden.

Es lassen sich jedoch aus dem allgemeinen Verlauf der vermehrten Clusterausbeute in $\langle 111 \rangle$ einige qualitative Aussagen gewinnen, die zu einem besseren Verständnis des Emissionsmechanismus führen. Dabei ist eine Berücksichtigung der Größe $\gamma_n^+(\alpha_{111}, E) / \gamma_n^+(\text{norm.}, E)$ nicht von ausschlaggebender Bedeutung. Für die Richtigkeit des kinetischen Modells spricht die Tatsache, daß die W_2^+ -Ausbeute für alle Energien größer ist als die W^+ -Ausbeute. Auch im Fall von W_3^+ ist die Ausbeute für Energien unterhalb von 80 eV größer als für W_2^+ . Der steile Abfall der W_3^+ -Ausbeute für Energien größer als 60 eV kann damit zusammenhängen, daß für diese Energien die Bedingung für "gleichen Impuls" (vgl. Glg. (49)) zum Tragen kommt. Aus dem steilen Abfall der W_3^+ -Ausbeute nach dem Maximum, der sicher nicht auf den energieabhängigen Ionisierungsprozeß zurückzuführen ist, kann man folgern, daß zur Clusterbildung hauptsächlich niederenergetische Atome ($E \leq 25 \text{ eV} < 3E_b$) beitragen. In diesem Energiebereich ist vor allem mit einer vermehrten Emission zu rechnen, die durch das Oberflächenmodell beschrieben wird. Das bedeutet, daß Fokussionen bei der Bildung der W_3 -Cluster keine wesentliche Rolle spielen. Weiter muß darauf hingewiesen werden, daß die Beschreibung der Ausbreitung der Stoßkaskade unter der Voraussetzung von Zweierstößen im Energiebereich der zur Emission von Atomen mit einer Energie von ca. 20 eV führt, nicht mehr korrekt ist. In diesem Fall ist eher mit einer kollektiven Wechselwirkung zu rechnen. Dadurch könnte die Anzahl benachbarter Atome, die gleichzeitig emittiert werden und damit zur Clusterbildung beitragen, stark erhöht werden.

Im Fall der vermehrten Emission von W_2^+ kann ein Beitrag von Fokussionen nicht ausgeschlossen werden. Das Energiespektrum der anisotropen Ausbeute von W_2^+ hat einen ähnlichen Verlauf wie dasjenige von W^+ . Das bedeutet, daß für W_2^+ in etwa die gleichen

Mechanismen wie bei W^+ zur Anisotropie beitragen.

6.4 Sonstige Effekte

Winkelverteilung. Eine Analyse der Winkelverteilung der Clusterausbeute (vgl. Abb. 17) ist wegen der experimentellen Bedingungen äußerst kompliziert, denn bei den Messungen wurde nicht nur der Einfallswinkel, sondern gleichzeitig auch der Emissionswinkel variiert. Nach Glg. (48) erwartet man eine Abhängigkeit der Zerstäubungsausbeute vom Einfallswinkel χ proportional zu $1/(\cos \chi)^f$ mit $f \approx 1,2$ für Argonbeschuß von Wolfram. Bei senkrechtem Einschuß ($\chi = 0$) erhält man für die Winkelverteilung $S(\psi)$ der Zerstäubung im allgemeinen eine Kosinusverteilung. Bei hohen Energien wurden Überkosinusverteilungen gefunden, d. h. bevorzugte Emission in Richtung der Oberflächennormalen (vgl. z. B. /2, 3/). Bei schiefe Ein-schuß können Emissionsverteilungen, die unsymmetrisch zur Oberflächennormalen verlaufen auftreten (z. B. /2, 3/). Im Fall der Emissionsverteilung geladener Teilchen muß zusätzlich die Winkelabhängigkeit des Ionisierungsgrades $\gamma_n^+(E, \psi)$ berücksichtigt werden.

Der experimentell gefundene Verlauf der Winkelabhängigkeit zeigt weder für W^+ noch für die Cluster eine Ähnlichkeit mit einer Verteilung $(\cos \psi / \cos \chi)^n$. Diese hätte man gemäß dem generellen Verlauf der oben angegebenen Parameter erwartet. Angesichts der Vielzahl der Parameter, die einen Einfluß auf die Winkelabhängigkeit der Sekundärionen haben, erscheint der Versuch wenig sinnvoll, aus der gemessenen Winkelabhängigkeit Information über Einzelheiten des Emissionsmechanismus zu gewinnen.

Korrelierte Streuung der Primärionen (Channelling).

Untersuchungen der Emission von W^+ und W_2^+ bei Beschuß von Wolfram mit Ar^+ -Ionen parallel zur dichtgepackten Gitterrichtung $\langle 111 \rangle$ ergaben eine Reduzierung der Ausbeuten (Abb.22). Dies hängt damit zusammen, daß beim Einschuß parallel zu einer

niedrigindizierten Richtung ein Teil der Projektile Stöße mit Oberflächenatomen erleidet, während der andere Teil infolge korrelierter Streuung entlang dichtgepackter Gittergeraden einen kleinen Energieverlust und damit eine große Reichweite hat (Channelling). Solche Projektile tragen nicht zur Zerstäubung bei /61/. Von Stößen mit Oberflächenatomen ist dagegen ein großer Beitrag zur Zerstäubung zu erwarten. In diesem Bild ist auch der in Abb. 23 dargestellte Verlauf qualitativ zu verstehen. Nimmt man an, daß hochenergetische Sekundärionen aus Kaskaden stammen, die durch Stoß von Projektilen mit Atomen der oberen Atomlage erzeugt wurden, dann ist verständlich, daß im Channelling-Fall nur eine geringe Erniedrigung für die genannten Ionen eintritt. Niederenergetische Ionen dagegen, d. h. solche mit einer Energie von weniger als 100 eV können auch aus tieferliegenden Kaskaden an die Oberfläche gelangen. Für sie ist im idealen Fall eine Ausbeuteerniedrigung etwa entsprechend der Minimumausbeute bei der Rückstreuung der Projektile zu erwarten. Zwischen den beschriebenen Extremfällen kann ein monotoner Übergang erwartet werden.

Auf eine weitergehende Diskussion der Energieabhängigkeit der Minimumsausbeute muß verzichtet werden, da Anzeichen dafür vorliegen, daß im Experiment noch keine befriedigende Ausrichtung des Primärstrahls bezüglich $\langle 111 \rangle$ erzielt werden konnte. Dafür spricht z. B. die Tatsache, daß die gemessene Halbwertsbreite von 6° (vgl. Abb. 22) wesentlich kleiner ist als der berechnete kritische Channelling-Winkel $2\psi_{\langle 111 \rangle} = 13,2^\circ$ /61/. Grundsätzlich scheinen jedoch derartige Messungen geeignet, Struktur und Tiefenverteilung der Stoßkaskaden zu analysieren.

6.5 Schlußbemerkung

Für eine Weiterführung der Untersuchungen dieser Arbeit lassen sich eine Reihe erfolgversprechender Parametervariationen angeben.

Messungen der Massenverteilung der Sekundärionen bei Variation der Projektilenergie innerhalb eines großen Energiebereichs (1 - 300 keV) werden dazu geeignet sein, die Ausdehnung der Stoßkaskaden zu untersuchen. Bei derartigen Experimenten werden jedoch gleichzeitig das nukleare und elektronische Bremsvermögen variiert, so daß eine quantitative Deutung der Ergebnisse wegen nicht exakter Kenntnis dieser Größen vermutlich auf Schwierigkeiten stößt.

Eine bessere Möglichkeit, den Einfluß der Stoßkaskaden auf die Zerstäubung zu studieren, wurde zuerst von Anderson und Bay /58/ benutzt. Sie besteht darin, Molekülionen als Projektile zu verwenden. Trifft z. B. ein zweiatomiges Projektil auf eine Festkörperoberfläche, dann zerfällt das Molekül wegen des im Vergleich zur Bindungsenergie hohen nuklearen Energieverlustes in seine Bestandteile. Dadurch können zwei sich überlappende Stoßkaskaden entstehen, die im Überlappungsgebiet eine höhere Energiedichte besitzen. Die Folge dieser Überlappung ist eine höhere Zerstäubungsausbeute pro Atom beim Beschuß mit Molekülionen M_2^+ der Energie $2E$ verglichen mit der der einatomigen Ionen M^+ der Energie E /58/. Wesentlich mehr Information über die Überlappung der Stoßkaskaden als aus Messungen der Zerstäubungsausbeute kann aus der Masse- und Energieverteilung der zerstäubten Teilchen gewonnen werden. Derartige Experimente an polykristallinem- und einkristallinem Wolfram sind geplant.

Wünschenswert sind ausführlichere Untersuchungen der anisotropen Clusterausbeute. Vor allem sind genaue Orientierung der Probe und hohe Genauigkeit und Reproduzierbarkeit des Emissionswinkels zur exakten Bestimmung der Halbwertsbreite der Emissionsverteilung erforderlich. Eine zusätzliche Erweiterung der

Experimente auf größere Cluster ($n > 3$), kleinere Energien ($E < 30$ eV), höhere Projektilmasse (Xe^+) und die $\langle 100 \rangle$ -Richtung ist möglich. Derartige Experimente sind dazu geeignete weitere Informationen zu gewinnen über Mechanismen, die zu einer vermehrten Emission führen.

Exaktere Experimente sind insbesondere für die Abhängigkeit der Clusterausbeute vom Einschußwinkel der Primärionen notwendig. Möglichkeiten bei derartigen Messungen Oberflächeneffekte zu studieren, ergibt sich, wenn die Beobachtung der Energieverteilung der zerstäubten Sekundärionen senkrecht zum Primärionenstrahl erfolgt /8/.

Aus den Ergebnissen dieser Arbeit kann - trotz der in den vorigen Abschnitten geschilderten Einschränkungen für ihre Interpretation - eindeutig geschlossen werden, daß die der Energie- und Massenanalyse zerstäubter ein- und mehratomiger Targetionen eine aussichtsreiche Methode zum Studium der Energiedissipation in Festkörpern und der Festkörperzerstörung ist. Dies gilt insbesondere für die kombinierte Messung an polykristallinen und einkristallinen Proben.

7. Literatur

- /1/ W.R. Grove, Trans. Roy. Soc. (London) 142 (1852) 87.
- /2/ R. Behrisch in S. Flügge und F. Trendelenburg (Hamburg),
Ergebnisse der exakten Naturwissenschaften XXXV, Springer,
Berlin, 1964, S. 295.
- /3/ M. Kaminsky, Atomic and Ionic Impact Phenomena on Metal
Surfaces, Springer, Berlin, 1965.
- /4/ G. Carter und J.S. Colligon, Ion Bombardment of Solids,
Heinemann Educational Books Ltd., London, 1968.
- /5/ M.W. Thompson, Defects and Radiation Damage in Metals,
Cambridge Univ. Press, 1969.
- /6/ R.S. Nelson, The Observation of Atomic Collisions in
Crystalline Solids, North Holland Publ. Comp., Amsterdam
(1968).
- /7/ P. Sigmund, Phys. Rev. 184 (1969) 383.
- /8/ P. Sigmund, Rev. Roum. Phys. 17 (1972) 823, 969, 1079.
- /9/ F. Schulz und R. Sizmann, GSF-Bericht S 34 (1967).
- /10/ R.H. Silsbee, J. Appl. Phys. 28 (1957) 1246.
- /11/ G. Duesing und G. Leibfried, phys. stat. sol. 9 (1965) 463.
- /12/ Chr. Lehmann und P. Sigmund, phys. stat. sol. 16 (1966) 507.
- /13/ W. O. Hofer, Dissertation, 1972, Universität München;
GSF-Bericht P 44 (1973).
- /14/ M. T. Robinson und Ian M. Torrens, Rad. Effects, im Druck
- /15/ J.J.Ph. Elich und H.E. Roosendaal, Phys. Letters 33A
(1970) 235.
- /16/ M.W. Thompson und B.W. Farmery, Phil. Mag. 18 (1968) 361.
- /17/ M.W. Thompson, Phil. Mag. 18 (1968) 377.
- /18/ B.W. Farmery und M.W. Thompson, Phil. Mag. 18 (1968) 415.
- /19/ G.E. Chapmann, B.W. Farmery, M.W. Thompson und I.H. Wilson,
Rad. Effects 13 (1972) 121.
- /20/ Z. Jurela und B. Perovič, Can. J. Phys. 46 (1968) 773.
- /21/ E. Dennis und R.J. MacDonald, Rad. Effects 13 (1972) 243.
- /22/ H.E. Beske, Z. Naturforschg. 22a (1967) 459.
- /23/ Z. Jurela in D.W. Palmer, M.W. Thompson und P.D. Townsend
(Ed.), Atomic Collision Phenomena in Solids, North.
Holland Publ. Comp., Amsterdam (1970).

- /24/ Z. Jurela, Rad. Effects 13 (1972) 167.
- /25/ G. Staudenmaier, GSF-Bericht S87 (1969) 146.
- /26/ G. Hortig und M. Müller, Z. Physik 221 (1969) 119.
- /27/ J. Mattauch und R. Herzog, Z. Physik 89 (1934) 786.
- /28/ A.P. Banford, The Transport of Charged Particle Beams, E. & F.N. Spon, Ltd., London (1966).
- /29/ H. Wollnik in A. Septier (Ed.), Focusing of Charged Particles, Vol. II, Academic Press, New York (1967).
- /30/ H.A. Enge in A. Septier (Ed.), Focusing of Charged Particles, Vol. II, Academic Press, New York (1967).
- /31/ R. Herzog, Arch. Elektrotechn. 29 (1935) 790.
- /32/ R. Herzog, Z. Naturforschg. 10a (1955) 887.
- /33/ R. Herzog, Phys. Z. 41 (1940) 18.
- /34/ G. Zintl, Dissertation (1971), TU München.
- /35/ K. Wittmaack, phys. stat. sol. 37 (1970) 633.
- /36/ K. Wittmaack, Dissertation (1969), Universität München.
- /37/ O. Almén u. G. Bruce, Nucl. Instr. Meth. 11 (1961) 257.
- /38/ M. Bader, F.C. Witteborn und T.W. Snouse, NASA Techn. Rep. R-105 (1961).
- /39/ G.K. Wehner und D. Rosenberg, J. Appl. Phys. 32 (1961) 887.
- /40/ G. Slodzian und J.F. Hennequin, C.R. Hebd., Sean. Acad. Sci. B. 263 (1966) 1246.
- /41/ D. Brochard und G. Slodzian, J. Physique 32 (1971) 185.
- /42/ R. Castaing und J.-F. Hennequin, Int. Conf. Mass. Spectrometry, Brüssel (1970).
- /43/ G. Achatzi, Diplomarbeit (1969), Sektion Physik, Universität München.
- /44/ G. Dürr, Diplomarbeit (1969), Sektion Physik, Universität München.
- /45/ H. Wende, Z. Naturforschg. 12a (1957) 967.
- /46/ H. Matsuda, Rev. Sci. Instr. 32 (1961) 850.
- /47/ L. Heroux und H.E. Hinteregger, Rev. Sci. Instr. 31 (1960) 280.
- /48/ G.W. Goodrich und W.C. Wiley, Rev. Sci. Instr. 32 (1961) 846.
- /49/ A. J. Socha, Surface Science 25 (1971) 147.
- /50/ G. Blaise und G. Slodzian, C.R. Hebd., Sean. Acad. Sci. B. 266 (1968) 1525.

- /51/ M. Leleyter und P. Joyes, Rad. Effects, im Druck
- /52/ R.F.K. Herzog, W.P. Poschenrieder und F.G. Satkiewicz,
NASA Contract No. NAS-9254, Final Report, GCA-TR-67-
3N (1967); Rad. Effects, im Druck
- /53/ R. Hernandez, P. Lanusse, G. Slodzian und G. Vidal,
La Recherche Aéronautique (1972) 313.
- /54/ M. Kamin/sky und S.K. Das, Rad. Effects, im Druck
- /55/ M.T. Robinson, Phil. Mag. 12 (1965) 145.
- /56/ P. Sigmund, M.T. Matthies und D.L. Philips, Rad. Effects
11 (1971) 39.
- /57/ H.H. Andersen und H. Bay, Rad. Effects 13 (1972) 67.
- /58/ H.H. Andersen und H. Bay, Rad. Effects, im Druck
- /59/ Chr. Lehmann und G. Leibfried, Z. Physik 162 (1961) 203.
- /60/ R.S. Nelson und M.W. Thompson, Proc. Roy. Soc. A 259
(1961) 458.
- /61/ D. Onderlinden, Dissertation (1968), Universität Leiden;
Can. J. Phys. 46 (1968) 738.
- /62/ H.H. Andersen und P. Sigmund, Nucl. Instr. Meth. 38
(1965) 238.
- /63/ D.E. Harrison, Jr., W.L. Moore, Jr., und H.T. Holcombe,
Rad. Effects, im Druck
- /64/ J.-F. Hennequin, J. Physique 29 (1968) 655.
- /65/ J.-F. Hennequin, J. Physique 29 (1968) 957.
- /66/ W.F. v.d. Weg und D.J. Bierman, Physica 44 (1969) 177
und 206.
- /67/ A. Benninghoven, Z. Physik 220 (1969) 159.
- /68/ J.M. Schroeer, T.N. Rhodin und R.C. Bradley, Surface
Science 34 (1973) 571.
- /69/ K. Kopitzki und H.E. Stier, Z. Naturforschg. 17a (1962)
346.
- /70/ R. Castaing und G. Shinoda, K. Kohra und T. Ichinokawa
(Ed), Proc. 6th Int. Conf. X-Ray Optics and Micro-
analysis, Osaka (1971), University of Tokyo Press.
- /71/ P. Joyes und J.-F. Hennequin, J. Physique 29 (1968) 483.
- /72/ P. Joyes, J. Physique 29 (1968) 774.
- /73/ P. Joyes, J. Physique 30 (1969) 245.
- /74/ P. Joyes, J. Physique 30 (1969) 365.

- /75/ G. Blaise und G. Slodzian, J. Physique 31 (1970) 93.
- /76/ R.E. Honig, J. Appl. Phys. 29 (1958) 549.
- /77/ J.R. Woodyard und C.B. Cooper, J. Appl. Phys. 35 (1964) 1107.
- /78/ A.P.M. Baede, W.F. Jungmann und J. Los, Physica 54 (1971) 459.
- /79/ V.E. Krohn, J. Appl. Phys. 33 (1962) 3523.
- /80/ Z. Jurela in Proc. of the fourth Yugoslav Symposium on Physics of Ionized Gases, Herceg Novi (1968).
- /81/ G.D. Tantsyrev und E.N. Nikolaev, JETP Letters 13 (1971) 337.
- /82/ P. Joyes, J. Phys. Chem. Solids 32 (1971) 1269.
- /83/ J. Lindhard, V. Nielsen und M. Scharff, Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd. 36, No. 10 (1968).
- /84/ J.E. Westmoreland und P. Sigmund, Rad. Effects 6 (1970) 187.
- /85/ P. Sigmund, Rad. Effects, im Druck.
- /86/ G. Leibfried, Bestrahlungseffekte im Festkörper, Teubner, Stuttgart, 1965, S. 262.
- /87/ P. Joyes und M. Leleyter (wird veröffentlicht).
- /88/ A.B. Lidiard in M.-W. Thompson (Ed.), Atomic Collision Cascades in Radiation Damage, Harwell 1964, AERE-R 4694 unveröffentlicht.
- /89/ A.D.G. Stewart und M.W. Thompson, J. Mat. Sci. 4 (1969) 56.
- /90/ N. Hermanne und A. Art, Rad. Effects 5 (1970) 203.
- /91/ G.K. Wehner und D.J. Hajicek, J. Appl. Phys. 42 (1971) 1145.
- /92/ N. Hermanne, Rad. Effects, im Druck.
- /93/ P. Sigmund, J. Mat. Sci., im Druck.

Herrn Prof. Dr. R. Sizmann danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit, für die Unterstützung bei ihrer Durchführung und für viele wertvolle Diskussionen.

Herrn Dr. K. Wittmaack gebührt mein Dank für seine stete Bereitschaft zu hilfreichen und anregenden Diskussionen.

Herrn Dr. G. Zintl danke ich für langjährige, fruchtbare Zusammenarbeit bei der Lösung experimenteller Probleme, Herrn Dr. F. Schulz und Herrn Dr. F. Bell für klärende Gespräche über auftretende Probleme.

Zahlreichen Mitarbeitern des Lehrstuhls Prof. Dr. R. Sizmann, insbesondere Herrn F. Centmayer und Herrn H. Bradatsch sowie den Herren der Werkstatt der Sektion Physik gilt mein Dank für gute Zusammenarbeit.

Lebenslauf

Geburt: 8. Juni 1936 in Heidenheim

Eltern: Martha Staudenmaier, geb. Arnold
Wilhelm Staudenmaier, Geschäftsführer

Schule: 1943/46 Volksschule Heidenheim
1946/56 Freie Waldorfschule Heidenheim
Reifeprüfung am 16. März 1956.

Studium: 1956/65 Universität München, Physik,
Diplomarbeit unter Leitung von Dr. K.
Stierstadt über "Die Bestimmungsgrößen
der Magnetisierungskurve von weichem
Nickel".
Diplom-Hauptprüfung am 4. Juni 1965.

Beruf: 1.11.65 - 31.3.66 Wissenschaftlicher
Mitarbeiter in der Gesellschaft für
Strahlenforschung mbH, Neuherberg.
1.4.66 - 31.12.68 Wissenschaftlicher
Angestellter der Universität München.
Seit 1.1.69 Verwalter einer wissen-
schaftlichen Assistentenstelle.
Während dieser Zeit Ausarbeitung der
vorgelegten Dissertation unter Leitung
von Prof. Dr. R. Sizmann.

